

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2001 年 4 月 5 日 (05.04.2001)

PCT

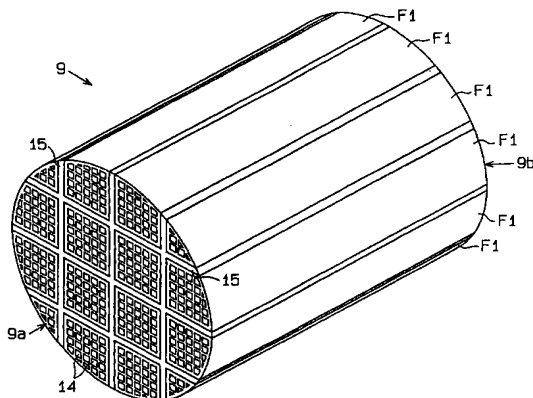
(10) 国際公開番号
WO 01/23069 A1

- (51) 国際特許分類⁷: B01D 39/20 (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): イビデン株式会社 (IBIDEN CO., LTD.) [JP/JP]; 〒503-8604 岐阜県大垣市神田町二丁目1番地 Gifu (JP).
- (21) 国際出願番号: PCT/JP00/06599 (72) 発明者; および (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 大野一茂 (OHNO, Kazushige) [JP/JP]. 島戸幸二 (SHIMATO, Koji) [JP/JP]. 辻 昌宏 (TSUJI, Masahiro) [JP/JP]; 〒501-0695 岐阜県揖斐郡揖斐川町北方1の1 イビデン株式会社 大垣北工場内 Gifu (JP).
- (22) 国際出願日: 2000 年 9 月 26 日 (26.09.2000)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ: (74) 代理人: 恩田博宣 (ONDA, Hironori); 〒500-8731 岐阜県岐阜市大宮町2丁目12番地の1 Gifu (JP).
- | | | |
|--------------|------------------------------|----|
| 特願平11/277432 | 1999 年 9 月 29 日 (29.09.1999) | JP |
| 特願平11/277123 | 1999 年 9 月 29 日 (29.09.1999) | JP |
| 特願平11/277119 | 1999 年 9 月 29 日 (29.09.1999) | JP |
| 特願平11/277122 | 1999 年 9 月 29 日 (29.09.1999) | JP |
| 特願平11/279866 | 1999 年 9 月 30 日 (30.09.1999) | JP |
| 特願平11/278405 | 1999 年 9 月 30 日 (30.09.1999) | JP |
- (81) 指定国 (国内): KR, US.
- (84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).

[続葉有]

(54) Title: HONEYCOMB FILTER AND CERAMIC FILTER ASSEMBLY

(54) 発明の名称: ハニカムフィルタ及びセラミックフィルタ集合体



(57) Abstract: A ceramic filter assembly (9) which is enhanced in exhaust gas treating efficiency, and which is integrated by bonding together via ceramic seal material layers (15) the outer peripheral surfaces of a plurality of filters (F1) each consisting of a porous ceramic sintered body, the seal material layer (15) having a thickness of 0.3 mm to 3 mm and a thermal conductivity of 0.1 W/mK to 10 W/mK.

(57) 要約:

排気ガスの処理効率が向上されたセラミックフィルタ集合体。セラミックフィルタ集合体 (9) は、各々が多孔質セラミック焼結体からなる複数のフィルタ (F1) の外周面をセラミック質シール材層 (15) を介して接着することにより一体化されたものである。シール材層 (15) は、0.3 mm ~ 3 mm の厚さを有し、かつ 0.1 W/mK ~ 10 W/mK の熱伝導率を有している。



添付公開書類:
— 国際調査報告書

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

明 細 書

ハニカムフィルタ及びセラミックフィルタ集合体

技術分野

本発明は、ハニカムフィルタ及びセラミックフィルタ集合体に関し、詳しくは、セラミック焼結体からなるハニカムフィルタ及び、複数のハニカムフィルタを接着することにより一体化されたセラミックフィルタ集合体に関する。

背景技術

自動車の台数は今世紀に入って飛躍的に増加しており、それに比例して自動車の内燃機関から出される排気ガスの量も急激な増加の一途を辿っている。特にディーゼルエンジンの出す排気ガス中に含まれる種々の物質は、汚染を引き起こす原因となるため、現在では世界環境にとって深刻な影響を与えつつある。また、最近では排気ガス中の微粒子（ディーゼルパティキュレート）が、ときとしてアレルギー障害や精子数の減少を引き起こす原因となるとの研究結果も報告されている。つまり、排気ガス中の微粒子を除去する対策を講じることが、人類にとって急務の課題であると考えられている。

このような事情のもと、従来より、多種の排気ガス浄化装置が提案されている。一般的な排気ガス浄化装置は、エンジンの排気マニホールドに連結された排気管の途上に設けられたケーシングと、その中に配置され、微細な孔を有するフィルタとを有している。フィルタの形成材料としては、金属や合金のほか、セラミックがある。セラミックからなるフィルタの代表例としては、コーディエライト製のハニカムフィルタが知られている。最近では、耐熱性・機械的強度・捕集効率が、高い、化学的に安定している、圧力損失が小さい等の利点を有する多孔質炭化珪素焼結体がフィルタ形成材料として用いられることが多い。

ここで「圧力損失」とは、フィルタ上流側の圧力値から下流側の圧力値を引い

たものをいう。排気ガスがフィルタを通過する際に抵抗を受けることが、圧力損失をもたらす最大の要因である。

ハニカムフィルタは自身の軸線方向に沿って延びる多数のセルを有している。排気ガスがフィルタを通り抜ける際、そのセル壁によって微粒子がトラップされる。その結果、排気ガス中から微粒子が除去される。

しかし、多孔質炭化珪素焼結体製のハニカムフィルタは熱衝撃に弱い。そのため、大型化するほどフィルタにクラックが生じやすくなる。よって、クラックによる破損を避ける手段として、複数の小さなフィルタ個片を一体化して1つの大きなセラミックフィルタ集合体を製造する技術が近年提案されている。

セラミックフィルタ集合体の一般的な製造方法を簡単に紹介する。まず、押出成形機の金型を用いてセラミック原料を連続的に押し出すことにより、四角柱状のハニカム成形体を形成する。ハニカム成形体を等しい長さに切断した後、その切断片を焼成してフィルタとする。焼成工程の後、各フィルタの外周面同士を4～5 mm厚のセラミック質シール材層を介して接着することにより、複数のフィルタを束ねて一体化する。以上の結果、所望のセラミックフィルタ集合体が完成する。

セラミックフィルタ集合体の外周面には、セラミックファイバ等からなるマット状の断熱材が巻き付けられる。この状態で、集合体は排気管の途上に設けられたケーシング内に収容される。

ところが、従来技術では、セラミックフィルタ集合体内にトラップされた微粒子が完全に焼失せず、部分的に燃え残りが生じやすいという問題があった。従って、排気ガスを処理する効率が悪かった。

又、従来技術のハニカムフィルタは全体的に角張った形状をしているため、外周面における角部に応力が集中しやすく、そこに欠け（チッピング）が生じることがあった。また、角部を起点としてシール材層側にクラックが発生することもあり、それが原因でセラミックフィルタ集合体が破壊に至るおそれがあった。また、集合体の破壊に至らない場合であっても、排気ガスのリークによって処理効

率が低下しやすいという問題があった。

又、フィルタ集合体の使用時に個々のハニカムフィルタ内に少なからず温度差が生じて、その結果、熱応力によってハニカムフィルタにクラックが発生し、集合体が破壊に至ることがしばしばあった。よって、ハニカムフィルタ集合体の強度向上を達成するためには、個々のハニカムフィルタの強度を向上させる必要がある。

更に、従来のセラミックフィルタ集合体は、全体として断面矩形状を呈しており、このような集合体の外形をカットすることにより、全体として断面略円形状または断面略楕円形状に形成することも行われている。

しかしながら、フィルタは多数のセルを有しているため、集合体の外形カットを行うと、カット後の集合体の外周面にセル壁が剥き出しになり、結果として外周面に凹凸ができる。従って、集合体を外周面に設けられた断熱材とともにケーシング内に收容しても、フィルタ長手方向に沿って隙間が生じる。このため、その隙間を介して排気ガスがリークしやすくなり、排気ガスの処理効率が低下するという問題があった。

ハニカムフィルタによって捕集されたディーゼルパティキュレートにおいて、粒子径の小さなパティキュレートは肺への定着率が高く健康に対するリスクが高いことが判明している。よって、小さな粒子径のパティキュレートを補足することに対する要求は高くなっている。

ところが、ハニカムフィルタの気孔径、気孔率が小さいと、ハニカムフィルタが緻密になりすぎてしまい、排気ガスがハニカムフィルタをスムーズに通過しにくくなり、圧力損失が大きくなる。又、セル壁を構成する粒子の比表面積が小さいと、ハニカムフィルタが緻密になりすぎてしまい、排気ガスがハニカムフィルタをスムーズに通過しにくくなり、圧力損失が大きくなる。従って、車両の運転条件を妨げ、燃費の悪化、運転フィーリングの悪化を招くという問題がある。

反対に、気孔径、気孔率が大きいと、上記のような問題は解決される。しかし、ハニカムフィルタ中に空隙が多くなりすぎてしまうため、細かい微粒子を捕集

することができなくなる。そのため、捕集効率が低下してしまうとともに、ハニカムフィルタの機械的強度が弱くなるという問題がある。

本発明の第一の目的は、排気ガスの処理効率が向上されたセラミックフィルタ集合体を提供することにある。

本発明の第二の目的は、強度に優れたセラミックフィルタ集合体を提供することにある。

本発明の第三の目的は、外周面における流体のリークを防止するセラミックフィルタ集合体を提供することにある。

本発明の第四の目的は、圧力損失が小さくかつ機械的強度に優れたハニカムフィルタを提供することにある。

発明の開示

本発明の第一の態様によれば、各々が多孔質セラミック焼結体からなる複数のフィルタの外周面をセラミック質シール材層を介して接着することにより一体化されたセラミックフィルタ集合体を提供される。前記シール材層は、 $0.3\text{ mm} \sim 3\text{ mm}$ の厚さを有し、かつ $0.1\text{ W/mK} \sim 10\text{ W/mK}$ の熱伝導率を有している。

本発明の第二の態様によれば、各々がセラミック焼結体からなる複数の角柱状ハニカムフィルタの外周面をセラミック質シール材層を介して接着することにより一体化されたセラミックフィルタ集合体を提供される。各ハニカムフィルタの外周面における角部は、面取りが施されたアール面を有し、そのアール面は $0.3 \sim 2.5$ の曲率 R を有する。

本発明の第三の態様によれば、各々が多孔質セラミック焼結体からなる複数のフィルタの外周面をセラミック質シール材層を介して接着することにより一体化されたセラミックフィルタ集合体を提供される。セラミックフィルタ集合体は、全体として断面略円形状または断面略楕円形状を有する集合体の外周面に形成され、セラミック質からなる凹凸解消層を備える。

本発明の第四の態様によれば、各々が多孔質セラミック焼結体からなる複数の柱状ハニカムフィルタの外周面をセラミック質シール材層を介して接着することにより一体化されたセラミックフィルタ集合体を提供される。被処理流体の流れ方向に沿ったフィルタ長さ L と、その流れ方向に対して直交する方向におけるフィルタ断面積 S との比 L/S が、 $0.06\text{ mm/mm}^2 \sim 0.75\text{ mm/mm}^2$ に設定されている。

本発明の第五の態様によれば、各々がセル壁によって区画された複数のセルを有し、前記セル壁によってパティキュレートを含む流体を浄化する複数のハニカムフィルタの外周面をセラミック質シール材層を介して接着することにより一体化されたハニカムフィルタ集合体を提供される。セル壁を構成する粒子の比表面積は、 $0.1\text{ m}^2/\text{g}$ 以上に設定されている。

本発明の第六の態様によれば、多孔質セラミック焼結体からなる柱状ハニカムフィルタが提供される。被処理流体の流れ方向に沿ったフィルタ長さ L と、その流れ方向に対して直交する方向におけるフィルタ断面積 S との比 L/S が、 $0.06\text{ mm/mm}^2 \sim 0.75\text{ mm/mm}^2$ に設定されている。

本発明の第七の態様によれば、多孔質セラミック焼結体からなるハニカムフィルタが提供される。ハニカムフィルタの平均気孔径が $5 \sim 15\text{ }\mu\text{m}$ で、平均気孔率が $30 \sim 50\%$ であり、ハニカムフィルタは 20% 以上の貫通気孔を有する。

本発明の第八の態様によれば、セル壁によって区画された複数のセルを有し、セル壁によってパティキュレートを含む流体を浄化するハニカムフィルタが提供される。セル壁を構成する粒子の比表面積が $0.1\text{ m}^2/\text{g}$ 以上に設定されている。

図面の簡単な説明

図1は、本発明の第一実施形態の排気ガス浄化装置の概略図。

図2は、図1の排気ガス浄化装置のセラミックフィルタ集合体の斜視図。

図3は、図2のセラミックフィルタ集合体のハニカムフィルタの斜視図。

図 4 は、図 1 の排気ガス浄化装置の要部拡大断面図。

図 5 は、図 2 のセラミックフィルタ集合体の要部拡大断面図。

図 6 は、第一の変形例のセラミックフィルタ集合体の要部拡大断面図。

図 7 は、本発明の第二実施形態のハニカムフィルタの斜視図。

図 8 は、セラミックフィルタ集合体の要部拡大断面図。

図 9 は、第一の変形例のセラミックフィルタ集合体の要部拡大断面図。

図 10 は、第一の変形例のハニカムフィルタの斜視図。

図 11 は、第二の変形例のハニカムフィルタの斜視図。

図 12 は、第三の変形例のハニカムフィルタの斜視図。

図 13 は、本発明の第三実施形態のセラミックフィルタ集合体の側面図。

図 14 (a) ~ 図 14 (c) は図 13 のセラミックフィルタ集合体の製造工程を説明するための概略斜視図。

図 15 は、変形例のセラミックフィルタ集合体の側面図。

図 16 は、本発明の第四実施形態のセラミックフィルタ集合体の斜視図。

図 17 は、図 16 のセラミックフィルタ集合体 3 のフィルタの斜視図。

図 18 (a) は、図 17 のフィルタの概略的な断面図、図 18 (b) は図 17 のフィルタの概略的な側面図。

図 19 は、本発明の第五及び第六実施形態のハニカム構造を備えたハニカムフィルタの斜視図である。

図 20 は、図 19 のフィルタ 59 の 20-20 線に沿った断面図。

図 21 は、排気ガス浄化装置の要部拡大断面図。

図 22 は、セラミックフィルタ集合体の斜視図。

発明を実施するための最良の形態

以下、本発明の第一実施形態のディーゼルエンジン用の排気ガス浄化装置 1 を、図 1 ~ 図 5 に基づき詳細に説明する。

図 1 に示されるように、排気ガス浄化装置 1 は、内燃機関としてのディーゼル

エンジン 2 から排出される排気ガスを浄化するための装置である。ディーゼルエンジン 2 は、図示しない複数の気筒を備えている。各気筒には、金属材料からなる排気マニホールド 3 の分岐部 4 がそれぞれ連結されている。各分岐部 4 は 1 本のマニホールド本体 5 にそれぞれ接続されている。従って、各気筒から排出された排気ガスは一箇所に集中する。

排気マニホールド 3 の下流側には、金属材料からなる第 1 排気管 6 及び第 2 排気管 7 が配設されている。第 1 排気管 6 の上流端は、マニホールド本体 5 に連結されている。第 1 排気管 6 と第 2 排気管 7 との間には、金属材料からなる筒状のケーシング 8 が配設されている。ケーシング 8 の上流端は第 1 排気管 6 の下流端に連結され、ケーシング 8 の下流端は第 2 排気管 7 の上流端に連結されている。この構成は、排気管 6、7 の途上にケーシング 8 が配設されていると把握することもできる。そして、第 1 排気管 6、ケーシング 8 及び第 2 排気管 7 が連通され、その中を排気ガスが流れる。

図 1 に示されるように、ケーシング 8 の中央部は、排気管 6、7 よりも大径である。従って、ケーシング 8 の内部領域は、排気管 6、7 の内部領域に比べて広い。ケーシング 8 内には、セラミックフィルタ集合体 9 が収容されている。

集合体 9 の外周面とケーシング 8 の内周面との間には、断熱材 10 が配設されている。断熱材 10 はセラミックファイバを含むマット状物であり、その厚さは数 mm ～ 数十 mm である。断熱材 10 は熱膨張性を有していることが好ましい。ここでいう熱膨張性とは、弾性構造を有するため熱応力を解放する機能があることを指す。その理由は、集合体 9 の最外周部から熱が逃げることを防止することにより、再生時のエネルギーロスを最小限に抑えるためである。また、再生時の熱によってセラミックファイバを膨張させることにより、排気ガスの圧力や走行による振動等のもたらすセラミックフィルタ集合体 9 の位置ずれを防止するためである。

セラミックフィルタ集合体 9 は、ディーゼルパティキュレートを除去するものであるため、一般にディーゼルパティキュレートフィルタ (DPF) と呼ばれる

。図 2，図 4 に示されるように、集合体 9 は、複数個のフィルタ F 1 を束ねて一体化することによって形成されている。集合体 9 の中心部分には四角柱状のフィルタ F 1 が配置され、その外形寸法は $3.3\text{ mm} \times 3.3\text{ mm} \times 1.67\text{ mm}$ である（図 3 参照）。四角柱状のフィルタ F 1 の周囲には、四角柱状でない複数の異型のフィルタ F 1 が配置されている。その結果、全体としてみると円柱状のセラミックフィルタ集合体 9（直径 1.35 mm 前後）が構成されている。

これらのフィルタ F 1 は、セラミック焼結体の一種である多孔質炭化珪素焼結体製である。炭化珪素焼結体を採用した理由は、他のセラミックに比較して、とりわけ耐熱性及び熱伝導性に優れるという利点があるからである。炭化珪素以外の焼結体として、例えば窒化珪素、サイアロン、アルミナ、コーディエライト、ムライト等の焼結体を選択することもできる。

図 3 等 に示されるように、これらのフィルタ F 1 は、いわゆるハニカム構造体である。ハニカム構造体を採用した理由は、微粒子の捕集量が増加したときでも圧力損失が小さいという利点があるからである。各フィルタ F 1 には、断面略正方形をなす複数の貫通孔 1 2 がその軸線方向に沿って規則的に形成されている。各貫通孔 1 2 は薄いセル壁 1 3 によって互いに仕切られている。セル壁 1 3 の外表面には、白金族元素（例えば Pt 等）やその他の金属元素及びその酸化物等からなる酸化触媒が担持されている。各貫通孔 1 2 の開口部は、いずれか一方の端面 9 a，9 b の側において、封止体 1 4（ここでは多孔質炭化珪素焼結体）により封止されている。従って、端面 9 a，9 b の全体は市松模様を呈している。その結果、フィルタ F 1 には、断面四角形状を有する多数のセルが形成されている。セルの密度は 200 個/インチ 前後に設定され、セル壁 1 3 の厚さは 0.3 mm 前後に設定され、セルピッチは 1.8 mm 前後に設定されている。多数あるセルのうち、約半数のものは上流端面 9 a において開口し、残りのものは下流端面 9 b において開口している。

フィルタ F 1 の平均気孔径は $1\text{ }\mu\text{ m} \sim 50\text{ }\mu\text{ m}$ 、さらには $5\text{ }\mu\text{ m} \sim 20\text{ }\mu\text{ m}$ であることが好ましい。平均気孔径が $1\text{ }\mu\text{ m}$ 未満であると、微粒子の堆積によるフ

フィルタ F 1 の目詰まりが著しくなる。一方、平均気孔径が $50\ \mu\text{m}$ を越えると、細かい微粒子を捕集することができなくなるため、捕集効率が低下してしまう。

フィルタ F 1 の気孔率は 30% ～ 70% 、さらには 40% ～ 60% であることが好ましい。気孔率が 30% 未満であると、フィルタ F 1 が緻密になりすぎてしまい、内部に排気ガスを流通させることができなくなるおそれがある。一方、気孔率が 70% を越えると、フィルタ F 1 中に空隙が多くなりすぎてしまうため、強度的に弱くなりかつ微粒子の捕集効率が低下してしまうおそれがある。

多孔質炭化珪素焼結体を選択した場合においてフィルタ F 1 の熱伝導率は、 20 W/mK ～ 80 W/mK であることがよく、さらには 30 W/mK ～ 70 W/mK であることが特によい。

図 4、図 5 に示されるように、合計 16 個のフィルタ F 1 は、外周面同士がセラミック質シール材層 15 を介して互いに接着されている。

ここで、セラミック質シール材層 15 について詳細に述べる。

シール材層 15 の熱伝導率は 0.1 W/mK ～ 10 W/mK であることが必要であり、さらには 0.2 W/mK ～ 2 W/mK であることが好ましい。

熱伝導率が 0.1 W/mK 未満であると、シール材層 15 の熱伝導性を十分に改善することができないため、シール材層 15 が依然として大きな熱抵抗となり、フィルタ F 1 間の熱伝導が阻害されてしまう。逆に、 10 W/mK を超える熱伝導率のものを得ようとする、と、接着性や耐熱性等といった性能が損なわれるおそれがあり、事実上製造が困難になるおそれがある。

また、シール材層 15 の厚さ t_1 は 0.3 mm ～ 3 mm であることが必要であり、さらには 0.5 mm ～ 2 mm であることが好ましい。

厚さ t_1 が 3 mm を超えるようになると、たとえ熱伝導率が高くてもシール材層 15 が依然として大きな熱抵抗となり、フィルタ F 1 間の熱伝導が阻害されてしまう。しかも、集合体 9 においてフィルタ F 1 部分の占める割合が相対的に減るため、濾過能力の低下につながってしまう。逆に、シール材層 15 の厚さ t_1 が 0.3 mm 未満であると、大きな熱抵抗にはならない反面、フィルタ F 1 同士

を接着する力が不足してしまい、集合体 9 が破壊しやすくなる。

シール材層 15 は、少なくとも無機繊維、無機バインダ、有機バインダ及び無機粒子からなり、かつ三次元的に交錯する無機繊維と無機粒子とを、無機バインダ及び有機バインダを介して互いに結合してなる弾性質素材からなることが望ましい。

シール材層 15 に含まれる無機繊維としては、シリカーアルミナファイバ、ムライトファイバ、アルミナファイバ及びシリカファイバから選ばれる少なくとも 1 種以上のセラミックファイバが挙げられる。これらのなかでも、特にシリカーアルミナセラミックファイバを選択することが望ましい。シリカーアルミナセラミックファイバは、弾性に優れるとともに熱応力を吸収する作用を示すからである。

この場合、シール材層 15 におけるシリカーアルミナセラミックファイバの含有量は、固形分で 10 重量%～70 重量%、好ましくは 10 重量%～40 重量%、より好ましくは 20 重量%～30 重量%である。含有量が 10 重量%未満であると、弾性体としての効果が低下する。一方、含有量が 70 重量%を超えると、熱伝導率の低下を招くばかりでなく、弾力性も低下する。

シリカーアルミナセラミックファイバにおけるショット含有量は、1 重量%～10 重量%、好ましくは 1 重量%～5 重量%、より好ましくは 1 重量%～3 重量%である。ショット含有量を 1 重量%未満にすることは、製造上困難であり、ショット含有量が 50 重量%を超えると、フィルタ F1 の外周面が傷付いてしまうという不利益がある。

シリカーアルミナセラミックファイバの繊維長は、1 mm～100 mm、好ましくは 1 mm～50 mm、より好ましくは 1 mm～20 mm である。繊維長が 1 mm 未満であると、弾性構造体を形成することができないという不利益がある。繊維長が 100 mm を超えると、繊維が毛玉化して無機微粒子の分散性が悪化するという不利益がある。また、繊維長が 100 mm を超えると、シール材層 15 を 3 mm 以下に薄くすることが困難になり、フィルタ F1 間の熱伝導性の改善が困

難となる。

シール材層 15 に含まれる無機バインダとしては、シリカゾル及びアルミナゾルから選ばれる少なくとも 1 種以上のコロイダルゾルが望ましい。そのなかでも、特にシリカゾルを選択することが望ましい。その理由は、シリカゾルは入手しやすく、焼成により容易に SiO_2 となるため、高温領域での接着剤として好適だからである。しかも、シリカゾルは絶縁性に優れているからである。

この場合、シール材層 15 におけるシリカゾルの含有量は、固形分で 1 重量%～30 重量%、好ましくは 1 重量%～15 重量%、より好ましくは 5 重量%～9 重量%である。1 重量%未満の含有量は、接着強度の低下を招き、逆に、30 重量%を超える含有量は、熱伝導率の低下を招く。

シール材層 15 に含まれる有機バインダとしては親水性有機高分子が好ましく、ポリビニルアルコール、メチルセルロース、エチルセルロース及びカルボメトキシセルロースから選ばれる少なくとも 1 種以上の多糖類がより好ましい。これらのなかでも、特にカルボキシメチルセルロースを選択することが望ましい。その理由は、カルボキシメチルセルロースは、シール材層 15 に好適な流動性を付与するため、常温領域において優れた接着性を示すからである。

この場合、シール材層 15 におけるカルボキシメチルセルロースの含有量は、固形分で 0.1 重量%～5.0 重量%、好ましくは 0.2 重量%～1.0 重量%、より好ましくは 0.4 重量%～0.6 重量%である。0.1 重量%未満の含有量は、マイグレーションの十分な抑制を困難にする。なお、「マイグレーション」とは、被シール体間に充填されたシール材層 15 が硬化する際に、シール材層 15 中のバインダが、溶媒の乾燥除去に伴って移動する現象のことをいう。一方、含有量が 5.0 重量%を超えると、高温によって有機バインダが焼失し、シール材層 15 の強度が低下する。

シール材層 15 に含まれる無機粒子としては、炭化珪素、窒化珪素及び窒化硼素から選ばれる少なくとも 1 種以上の無機粉末またはウイスキーを用いた弾性質素材であることが好ましい。このような炭化物や窒化物は、熱伝導率が非常に大

きく、セラミックファイバ表面やコロイダルゾルの表面及び内部に介在して熱伝導性の向上に寄与するからである。

上記炭化物及び窒化物の無機粒子のなかでも、特に炭化珪素粉末を選択することが望ましい。その理由は、炭化珪素は熱伝導率が極めて高いことに加え、セラミックファイバと馴染みやすいという性質があるからである。しかも、第1実施形態では、被シール体であるフィルタF1が多孔質炭化珪素製であるため、同種の炭化珪素粉末を選択することが好ましい。

この場合、炭化珪素粉末の含有量は、固形分で3重量%～80重量%、好ましくは10重量%～60重量%、より好ましくは20重量%～40重量%である。含有量が3重量%未満であると、シール材層15の熱伝導率が低下して、シール材層15の熱抵抗が依然として大きな値を有する。一方、含有量が80重量%を超えると、高温時における接着強度が低下する。

炭化珪素粉末の粒径は、 $0.01\mu\text{m}$ ～ $100\mu\text{m}$ 、好ましくは $0.1\mu\text{m}$ ～ $15\mu\text{m}$ 、より好ましくは $0.1\mu\text{m}$ ～ $10\mu\text{m}$ である。粒径が $100\mu\text{m}$ を超えると、接着力及び熱伝導性が低下する。一方、粒径が $0.01\mu\text{m}$ 未満であると、シール材層15のコストが上昇する。

次に、セラミックフィルタ集合体9の製造手順を説明する。

まず、押出成形工程で使用するセラミック原料スラリー、端面封止工程で使用する封止用ペースト、フィルタ接着工程で使用するシール材層形成用ペーストをあらかじめ作製しておく。

セラミック原料スラリーは、炭化珪素粉末に有機バインダ及び水を所定分量ずつ配合し、かつ混練することにより作製される。封止用ペーストは、炭化珪素粉末に有機バインダ、潤滑剤、可塑剤及び水を配合し、かつ混練することにより作製される。シール材層形成用ペーストは、無機繊維、無機バインダ、有機バインダ、無機粒子及び水を所定分量ずつ配合し、かつ混練することにより作製される。

次に、セラミック原料スラリーを押出成形機に投入し、かつ金型を介してそれ

を連続的に押し出す。その後、押出成形されたハニカム成形体を等しい長さに切断し、四角柱状のハニカム成形体切断片を得る。さらに、切断片の各セルの片側開口部に所定量ずつ封止用ペーストを充填し、各切断片の両端面を封止する。

続いて、温度・時間等を所定の条件に設定して本焼成を行い、ハニカム成形体切断片及び封止体 14 を完全に焼結させる。このようにして得られる多孔質炭化珪素焼結体製のフィルタ F 1 は、この時点ではまだ全てのものが四角柱状である。

なお、 $6\ \mu\text{m}$ ～ $15\ \mu\text{m}$ の平均気孔径と、 35% ～ 50% の気孔率を得るために、本実施形態では焼成温度を 2100°C ～ 2300°C に設定している。また、焼成時間を 0.1 時間～ 5 時間に設定している。また、焼成時の炉内雰囲気を不活性雰囲気とし、そのときの雰囲気の圧力を常圧としている。

次に、必要に応じてフィルタ F 1 の外周面にセラミック質からなる下地層を形成した後、さらにその上にシール材層形成用ペーストを塗布する。そして、このようなフィルタ F 1 を 16 個用い、その外周面同士を互いに接着して一体化する。

続く外形カット工程では、フィルタ接着工程を経て得られた断面正形状の集合体 9 を研削し、外周部における不要部分を除去してその外形を整え、断面円形状のセラミックフィルタ集合体 9 を形成する。

次に、セラミックフィルタ集合体 9 による微粒子トラップ作用について簡単に説明する。

ケーシング 8 内に収容されたセラミックフィルタ集合体 9 には、上流端面 9 a の側に排気ガスが供給される。第 1 排気管 6 を経て供給されてくる排気ガスは、まず、上流端面 9 a において開口するセル内に流入する。次いで、この排気ガスはセル壁 13 を通過し、それに隣接しているセル、即ち下流端面 9 b において開口するセルの内部に到る。そして、排気ガスは、同セルの開口を介してフィルタ F 1 の下流端面 9 b から流出する。しかし、排気ガス中に含まれる微粒子はセル壁 13 を通過することができず、そこにトラップされてしまう。その結果、浄化

された排気ガスがフィルタ F 1 の下流端面 9 b から排出される。浄化された排気ガスは、さらに第 2 排気管 7 を通過した後、最終的には大気中へと放出される。また、トラップされた微粒子は、集合体 9 の内部温度が所定の温度に達すると、触媒の作用により着火して燃焼する。

(実施例 1 - 1)

(1) 平均粒径 $10\ \mu\text{m}$ の α 型炭化珪素粉末 51.5 重量%と、平均粒径 $0.5\ \mu\text{m}$ の α 型炭化珪素粉末 22 重量%とを湿式混合し、得られた混合物に有機バインダ（メチルセルロース）と水とをそれぞれ 6.5 重量%、20 重量%ずつ加えて混練した。次に、前記混練物に可塑剤と潤滑剤とを少量加えてさらに混練したものを押出成形することにより、ハニカム状の生成形体を得た。具体的には、 α 型炭化珪素粉末として、平均粒径が約 $10\ \mu\text{m}$ のものは屋久島電工株式会社製の商品名：C-1000F) を用い、平均粒径が $0.5\ \mu\text{m}$ のものは屋久島電工株式会社製の商品名：GC-15 を用いた。

(2) 次に、この生成形体をマイクロ波乾燥機を用いて乾燥した後、成形体の貫通孔 12 を多孔質炭化珪素焼結体製の封止用ペーストによって封止した。次いで、再び乾燥機を用いて封止用ペーストを乾燥させた。端面封止工程に続いて、この乾燥体を 400°C で脱脂した後、さらにそれを常圧のアルゴン雰囲気下において 2200°C で約 3 時間焼成した。その結果、多孔質でハニカム状の炭化珪素製フィルタ F 1 を得た。

(3) セラミックファイバ（アルミナシリケートセラミックファイバ、ショット含有率 3%、繊維長さ $0.1\text{mm} \sim 100\text{mm}$ ）23.3 重量%、平均粒径 $0.3\ \mu\text{m}$ の炭化珪素粉末 30.2 重量%、無機バインダとしてのシリカゾル（ゾルの SiO_2 の換算量は 30%）7 重量%、有機バインダとしてのカルボキシメチルセルロース 0.5 重量%及び水 39 重量%を混合・混練した。この混練物を適当な粘度に調整することにより、シール材層 15 の形成に使用されるペーストを作製した。

(4) 次に、フィルタ F 1 の外周面に前記シール材層形成用ペーストを均一に

塗布するとともに、フィルタ F 1 の外周面同士を互いに密着させた状態で、 $50^{\circ}\text{C} \sim 100^{\circ}\text{C} \times 1$ 時間の条件にて乾燥・硬化させる。その結果、フィルタ F 1 同士をシール材層 15 を介して接着する。ここではシール材層 15 の厚さ t_1 を 0.5 mm に設定した。シール材層 15 の熱伝導率は 0.3 W/mK であった。

(5) 次に、外形カットを実施して外形を整えることにより、断面円形状のセラミックフィルタ集合体 9 を完成させた。

次に、上記のようにして得られた集合体 9 に断熱材 10 を巻き付け、この状態で集合体 9 をケーシング 8 内に収容し、実際に排気ガスを供給した。そして、一定期間経過した後に集合体 9 を取り出してそれを複数箇所で切断し、各切断面を肉眼で観察した。

その結果、燃え残りの起こりやすい集合体 9 の外周部分（とりわけ下流端面付近の外周部分）について、微粒子の残留は認められなかった。勿論、それ以外の部分についても、微粒子は完全に焼失していた。これは、シール材層 15 の使用によりフィルタ F 1 間の熱伝導が阻害されにくくなり、集合体 9 の外周部分も十分に温度上昇した結果であると考えられる。従って、実施例 1-1 によれば、排気ガスを効率よく処理できることが明らかとなった。

(実施例 1-2, 1-3)

実施例 1-2 では、シール材層 15 の厚さ t_1 を 1.0 mm に設定し、それ以外の事項については基本的に実施例 1-1 に順ずるようにして、セラミックフィルタ集合体 9 を作製した。実施例 3 では、シール材層 15 の厚さ t_1 を 2.5 mm に設定し、それ以外の事項については基本的に実施例 1-1 に順ずるようにして、セラミックフィルタ集合体 9 を作製した。

次に、得られた 2 種の集合体 9 を、実施例 1-1 のときと同様に一定期間使用し、その後で切断面の肉眼観察を行ったところ、実施例 1-1 に匹敵する好適な結果が得られた。よって、実施例 1-2, 1-3 についても排気ガスを効率よく処理できることが明らかとなった。

(実施例 1-4)

実施例 1－4では、セラミックファイバ（ムライトファイバ、ショット含有率 5 重量％、繊維長さ 0.1 mm～100 mm）25 重量％、平均粒径 1.0 μ m の窒化珪素粉末 30 重量％、無機バインダとしてのアルミナゾル（アルミナゾルの換算量は 20％）7 重量％、有機バインダとしてのポリビニルアルコール 0.5 重量％及びアルコール 37.5 重量％を混合・混練したものを、前記シール材層形成用ペーストとして使用した。それ以外の事項については実施例 1－1 に順ずるようにして、セラミックフィルタ集合体 9 を作製した。ここではシール材層 15 の厚さ t_1 を 1.0 mm に設定した。シール材層 15 の熱伝導率は 0.2 W/mK であった。

次に、得られた集合体 9 を、実施例 1－1 のときと同様に一定期間使用し、その後で切断面の肉眼観察を行ったところ、実施例 1 に匹敵する好適な結果が得られた。よって、実施例 4 についても排気ガスを効率よく処理できることが明らかとなった。

（実施例 1－5）

実施例 1－5 は、セラミックファイバ（アルミナファイバ、ショット含有率 4 重量％、繊維長さ 0.1 mm～100 mm）23 重量％、平均粒径 1 μ m の窒化硼素粉末 35 重量％、無機バインダとしてのアルミナゾル（アルミナゾルの換算量は 20％）8 重量％、有機バインダとしてのエチルセルロース 0.5 重量％及びアセトン 35.5 重量％を混合・混練したものを、前記シール材層形成用ペーストとして使用した。それ以外の事項については実施例 1 に順ずるようにして、セラミックフィルタ集合体 9 を作製した。ここではシール材層 15 の厚さ t_1 を 1.0 mm に設定した。シール材層 15 の熱伝導率は 2 W/mK であった。

次に、得られた集合体 9 を、実施例 1－1 のときと同様に一定期間使用し、その後で切断面の肉眼観察を行ったところ、実施例 1－1 に匹敵する好適な結果が得られた。よって、実施例 5 についても排気ガスを効率よく処理できることが明らかとなった。

従って、第一実施形態のセラミックフィルタ集合体 9 は以下の利点を有する。

(1) 各実施例では、いずれも、シール材層 15 の厚さ t_1 を $0.3\text{ mm} \sim 3\text{ mm}$ という好適範囲内に設定し、かつその熱伝導率を $0.1\text{ W/mK} \sim 10\text{ W/mK}$ という好適範囲内に設定している。このため、シール材層 15 の熱伝導性が改善され、シール材層 15 によるフィルタ F 1 間の熱伝導の阻害が防止される。従って、熱が集合体 9 の全体に均一にかつ速やかに伝導し、集合体 9 内に温度差が生じにくくなる。よって、集合体 9 の均熱性が向上し、部分的な燃え残りの発生も回避される。そして、このような集合体 9 を使用した排気ガス浄化装置 1 は、排気ガスの処理効率に優れたものとなる。

また、厚さ t_1 及び熱伝導率が上記範囲内であるならば、接着性や耐熱性等といった基本性能も維持されるため、シール材層 15 の製造が困難になることも回避できる。しかも、フィルタ F 1 同士を接着する力も備えているため、集合体 9 の破壊も回避できる。つまり、比較的製造しやすく、耐久性に優れた集合体 9 を実現することができる。

(2) 各実施例におけるシール材層 15 は、固形分で 10 重量%～70 重量%のセラミックファイバを含有している。このため、シール材層 15 に高い熱伝導率及び弾力性を付与することができる。よって、フィルタ F 1 間の熱伝導性が改善され、集合体 9 の均熱性がよりいっそう向上する。

(3) 各実施例におけるシール材層 15 は、繊維長が 100 mm 以下のセラミックファイバを含有している。従って、シール材層 15 の厚さ t_1 を困難なく 3 mm 以下に設定することができる。このことはフィルタ F 1 間の熱伝導性の改善、ひいては集合体 9 の均熱化に寄与する。

(4) 各実施例におけるシール材層 15 は、固形分で 3 重量%～80 重量%の無機粒子を含有している。従って、シール材層 15 に高い熱伝導率が付与される。このこともフィルタ F 1 間の熱伝導性の改善、ひいては集合体 9 の均熱化に寄与する。

(5) 各実施例におけるシール材層 15 は、少なくとも無機繊維、無機バインダ、有機バインダ及び無機粒子からなり、かつ三次元的に交錯する前記無機繊維と

無機粒子とを、無機バインダ及び有機バインダを介して互いに結合してなる弾性質素材からなる。

このような材料には下記のような利点がある。即ち、低温域及び高温域の両方において十分な接着強度を期待することができる。また、この材料は弾性質素材であることから、集合体 9 に熱応力が加わるときでも、その熱応力を確実に開放することができる。

なお、本発明の第一実施形態は以下のように変更してもよい。

(イ) フィルタ F 1 は 16 個に限られず、任意の数であってもよい。この場合、サイズ・形状等の異なるフィルタ F 1 を適宜組み合わせて使用してもよい。

(ロ) 図 6 に示されるように、別例のセラミックフィルタ集合体 21 では、フィルタ軸線方向に直交する方向に沿って各フィルタ F 1 が互いにずれて配置され、各フィルタ F 1 がシール材層 15 により接着されている。この場合には、ケーシング 8 への収容時にフィルタ F 1 にずれが生じにくくなるため、集合体 21 の破壊強度が向上する。図 6 のセラミックフィルタ集合体 21 では、シール材層 15 が十分字状部分含まず、このことが破壊強度の向上に寄与しているものと考えられる。また、集合体 21 の径方向に沿った熱伝導性がさらに向上する結果、集合体 21 のよりいっそうの均熱化が図られる。

(ハ) ハニカム状構造のフィルタ F 1 の代わりに、例えば三次元網目構造、フォーム状構造、ヌードル状構造、ファイバ状構造等のフィルタが用いられてもよい。

(ニ) 外形カット工程前におけるフィルタ F 1 の形状は、四角柱状に限定されず、三角柱状や六角柱状等であってもよい。また、外形カット工程によって集合体 9 の全体形状は、断面円形状のみならず、例えば断面楕円形状に加工されてもよい。

図 7 は本発明の第二実施形態のセラミックフィルタ集合体におけるハニカムフィルタ F 10 の斜視図であり、図 8 は排気ガス浄化装置の要部拡大断面図である。ハニカムフィルタ F 10 の外周面における角部は面取りにより形成されたアー

ル面 18 を有する。アール面 18 の曲率は $R = 0.3 \sim 2.5$ であることが必要であり、さらには $R = 0.7 \sim 2.5$ であることが好ましく、特には $R = 1.0 \sim 2.0$ であることがより好ましい。

曲率 R が 0.3 以下であると、角部が依然として角張っていることから、角部への応力集中を十分に回避することができず、欠けやクラックの発生につながりやすくなる。逆に、 R が 2.5 を超えると、ハニカムフィルタ F1 の断面積が減少する結果、有効セル数が減ってしまい、集合体 29 の濾過能力の低下を招く。

第二実施形態のセラミックフィルタ集合体の製造手順は、第一実施形態の製造手順に、四角柱状のハニカム成形体切断片の各角部に対して面取り加工を施し、所定曲率 R を有するアール面 18 を形成する工程が加えられる。

(実施例 2-1)

実施例 2-1 では、生成形体をマイクロ波乾燥機を用いて乾燥した後、各角部を削ることで面取りを施し、各角部に $R = 1.5$ のアール面 18 を形成し、それ以外の事項については実施例 1-1 に順ずるようにしてセラミックフィルタ集合体 29 を作製した。

上記のようにして得られた集合体 29 を用いて実際に排気ガスを供給し、一定期間経過した後に集合体 29 を取り出して肉眼観察を行った。

その結果、各角部を起点としたシール材層 15 のクラックは全く認められなかった。また、角部の欠けも全く認められなかった。従って、実施例 2-1 の集合体 29 は、極めて強度に優れていることが明らかとなった。

(実施例 2-2, 2-3)

実施例 2 では、アール面 18 の曲率を $R = 0.4$ に設定し、それ以外の事項については基本的に実施例 2-1 に順ずるようにして、セラミックフィルタ集合体 9 を作製した。実施例 2-3 では、アール面 18 の曲率を $R = 2.4$ に設定し、それ以外の事項については基本的に実施例 2-1 に順ずるようにして、セラミックフィルタ集合体 29 を作製した。

次に、得られた 2 種の集合体 29 を、実施例 2-1 のときと同様に一定期間使

用し、その後で肉眼観察を行ったところ、実施例 2-1 に匹敵する好適な結果が得られた。つまり、実施例 2-2, 2-3 の集合体 29 も、極めて強度に優れていることが明らかとなった。

(実施例 2-4)

実施例 2-4 では、実施例 1-4 に順じてシール材層形成用ペーストを作製し、それ以外の事項については実施例 2-1 に順じてセラミックフィルタ集合体 29 を作製した。ここではシール材層 15 の厚さを 1.0 mm に設定し、各角部のアール面 18 の曲率を $R = 1.5$ に設定した。

次に、得られた集合体 29 を、実施例 2-1 のときと同様に一定期間使用し、その後で肉眼観察を行ったところ、実施例 2-1 に匹敵する好適な結果が得られた。つまり、実施例 2-4 の集合体 9 も、極めて強度に優れていることが明らかとなった。

(実施例 2-5)

実施例 2-5 は、実施例 1-5 に順じてシール材層形成用ペーストを作製し、それ以外の事項については実施例 2-1 に順じてセラミックフィルタ集合体 9 を作製した。ここではシール材層 15 の厚さを 1.0 mm に設定し、各角部のアール面 18 の曲率を $R = 1.5$ に設定した。

次に、得られた集合体 29 を、実施例 2-1 のときと同様に一定期間使用し、その後で肉眼観察を行ったところ、実施例 2-1 に匹敵する好適な結果が得られた。

(比較例)

比較例では、各角部に対する面取り加工を施さないようにし、それ以外の事項については基本的に実施例 2-1 に順ずるようにして、セラミックフィルタ集合体 9 を作製した。従って、集合体 29 を構成する各ハニカムフィルタ F1 は、角張ったものであった。

次に、得られた集合体 29 を、実施例 2-1 のときと同様に一定期間使用し、その後で肉眼観察を行ったところ、応力の集中によって複数箇所にクラックや欠

けが生じていた。従って、強度に劣るものとなっていた。

従って、第二実施形態のセラミックフィルタ集合体は以下の利点を有する。

(1) ハニカムフィルタ F 1 の外周面における角部が好適曲率範囲のアール面 1 8 を有していることから、当該角部への応力集中を回避することができる。従って、ハニカムフィルタ F 1 の角部の欠けや、角部を起点としたシール材層 1 5 のクラックが防止され、セラミックフィルタ集合体 2 9 が破壊しにくくなる。よって、集合体 2 9 の強度が向上し、これを用いた排気ガス浄化装置 1 の強度及び濾過能力が向上する。

(2) 多孔質体炭化珪素焼結体からなるハニカムフィルタ 1 を用いることにより、濾過能力が向上され、かつ圧力損失が小さく、しかも耐熱性及び熱伝導性に優れた集合体 2 9 が得られる。

なお、第二実施形態は以下のように変更してもよい。

図 9 に示されるように、フィルタ軸線方向に直交する方向に沿って各ハニカムフィルタ F 1 が互いにずらした状態で配置されたセラミックフィルタ集合体 2 2 1 に本発明が具体化されてもよい。

アール面 1 8 を角部に対する面取り加工により形成する代わりに、金型成形によりハニカム成形体を成形する際にアール面を同時に形成してもよい。

外形カット工程前におけるハニカムフィルタ F 1 の形状は、断面正形状の四角柱に限定されることはない。例えば、図 1 0 に示されるように、断面長形状の四角柱に形成されたハニカムフィルタ F 2 0 であってもよい。さらには、図 1 1 に示されるように、三角柱状のハニカムフィルタ F 3 0 や、図 1 2 に示されるように六角柱状のハニカムフィルタ F 4 0 であってもよい。

図 1 3 は、本発明の第三実施形態のセラミックフィルタ集合体 3 9 の概略的な断面図である。

図 1 3、図 1 4 (b) に示されるように、第三実施形態のセラミックフィルタ集合体 3 9 の外周面 3 9 c には、セラミック質からなる凹凸解消層 1 6 が形成されている。凹凸解消層 1 6 は、少なくともセラミック繊維及びバインダを含むセ

ラミック材料を用いて形成される。セラミック材料中には、炭化珪素、窒化珪素、窒化硼素等のような無機粒子が含まれていることが好ましい。バインダとしては、シリカゾルやアルミナゾル等のような無機バインダや、多糖類等に代表される有機バインダを用いることが好ましい。セラミック材料は、三次元的に交錯するセラミック繊維と無機粒子とがバインダを介して互いに結合されたものであることが望ましい。なお、凹凸解消層 16 はシール材層 15 と同種の材料を用いて形成されることが望ましく、特に全く同じ材料を用いて形成されることが極めて望ましい。

凹凸解消層 16 は、0.1 mm～1.0 mm の厚さを有していることが好ましく、さらには 0.3 mm～2 mm であることが更に好ましく、特に 0.5 mm～1 mm であることが最適である。凹凸解消層 16 が薄すぎると、セラミックフィルタ集合体 9 の外周面 9c にある凹凸 17 を完全に埋めることができず、依然としてそこに隙間が残りやすくなる。逆に、凹凸解消層 16 を厚くすると、層形成が困難になったり、集合体 9 全体が大径化したりするおそれがある。

なお、シール材層 15 は凹凸解消層 16 よりも薄く、具体的には 0.3 mm～3 mm の範囲内形成されることが好ましい。シール材層 15 が凹凸解消層 16 よりも薄いことにより、濾過能力及び熱伝導性の低下が未然に防止される。

次に、セラミックフィルタ集合体 39 の製造手順を図 14 に従って説明する。

まず、押出成形工程で使用するセラミック原料スラリー、端面封止工程で使用する封止用ペースト、フィルタ接着工程で使用するシール材層形成用ペースト、凹凸解消層形成工程で使用する凹凸解消層形成用ペーストをあらかじめ作製しておく。シール材層形成用ペーストを凹凸解消層の形成にも使用する場合には、凹凸解消層形成用ペーストは作製する必要はない。

炭化珪素粉末に有機バインダ及び水を所定分量ずつ配合し、かつ混練することによりセラミック原料スラリーを作製する。炭化珪素粉末に有機バインダ、潤滑剤、可塑剤及び水を配合し、かつ混練することにより封止用ペーストを作製する。無機繊維、無機バインダ、有機バインダ、無機粒子及び水を所定分量ずつ配合

し、かつ混練することによりシール材層形成用ペースト（凹凸解消層形成用ペースト）を作製する。

次に、セラミック原料スラリーを押出成形機に投入し、かつ金型を介してそれを連続的に押し出す。その後、押出成形されたハニカム成形体を等しい長さに切断し、四角柱状のハニカム成形体切断片を得る。さらに、切断片の各セルの片側開口部に所定量ずつ封止用ペーストを充填し、各切断片の両端面を封止する。

続いて、温度・時間等を所定の条件に設定して本焼成を行い、ハニカム成形体切断片及び封止体 14 を完全に焼結させる。このようにして得られる多孔質炭化珪素焼結体製のフィルタ F 1 は、この時点ではまだ全てのものが四角柱状である。

なお、平均気孔径を $6\ \mu\text{m}$ ～ $15\ \mu\text{m}$ としかつ気孔率を 35% ～ 50% とするために、本実施形態では焼成温度を 2100°C ～ 2300°C に設定している。また、焼成時間を 0.1 時間～5 時間に設定している。また、焼成時の炉内雰囲気の不活性雰囲気とし、そのときの雰囲気の圧力を常圧としている。

次に、必要に応じてフィルタ F 1 の外周面にセラミック質からなる下地層を形成した後、さらにその上にシール材層形成用ペーストを塗布する。そして、このようなフィルタ F 1 を 16 個用い、その外周面同士を互いに接着して一体化する。この時点では、図 14 (a) に示されるように、セラミックフィルタ集合体 39A は全体として断面正形状を呈している。

続く外形カット工程では、前記フィルタ接着工程を経て得られた断面正形状の集合体 39A を研削し、外周部における不要部分を除去してその外形を整える。

その結果、図 14 (b) に示されるように、断面円形状のセラミックフィルタ集合体 39 が得られる。なお、外形カットによって新たに露出した面にはセル壁 13 が部分的に剥き出しになり、結果として外周面 39c に凹凸 17 ができる。

凹凸 17 は、0.5 mm ～ 1 mm 程度のものであって、集合体 39 の軸線方向（即ちフィルタ F 1 の長手方向）に沿って延びる突条と溝とを含む。

続く凹凸解消層形成工程では、シール材層形成用ペーストを凹凸解消層形成用ペーストとして用いて集合体 3 9 の外周面 9 c の上に均一に塗布する。その結果、図 1 4 (c) に示されるセラミックフィルタ集合体 3 9 が完成する。

(実施例 3 - 1)

(1) α 型炭化珪素粉末 5 1. 5 重量%と β 型炭化珪素粉末 2 2 重量%とを湿式混合し、得られた混合物に有機バインダ (メチルセルロース) と水とをそれぞれ 6. 5 重量%、2 0 重量%ずつ加えて混練した。次に、混練物に可塑剤と潤滑剤とを少量加えてさらに混練したものを押出成形することにより、ハニカム状の生成形体を得た。

(2) 次に、この生成形体をマイクロ波乾燥機を用いて乾燥した後、成形体の貫通孔 1 2 を多孔質炭化珪素焼結体製の封止用ペーストによって封止した。次いで、再び乾燥機を用いて封止用ペーストを乾燥させた。端面封止工程に続いて、この乾燥体を 4 0 0 °C で脱脂した後、さらにそれを常圧のアルゴン雰囲気下において 2 2 0 0 °C で約 3 時間焼成した。その結果、多孔質でハニカム状の炭化珪素製フィルタ F 1 を得た。

(3) セラミックファイバ (アルミナシリケートセラミックファイバ、ショット含有率 3 %、繊維長さ 0. 1 mm ~ 1 0 0 mm) 2 3. 3 重量%、平均粒径 0. 3 μ m の炭化珪素粉末 3 0. 2 重量%、無機バインダとしてのシリカゾル (ゾルの SiO₂ の換算量は 3 0 %) 7 重量%、有機バインダとしてのカルボキシメチルセルロース 0. 5 重量%及び水 3 9 重量%を混合・混練した。この混練物を適当な粘度に調整することにより、シール材層 1 5 及び凹凸解消層 1 6 の形成に使用される兼用ペーストを作製した。

(4) 次に、フィルタ F 1 の外周面に兼用ペーストを均一に塗布するとともに、フィルタ F 1 の外周面同士を互いに密着させた状態で、5 0 °C ~ 1 0 0 °C × 1 時間の条件にて乾燥・硬化させる。その結果、フィルタ F 1 同士をシール材層 1 5 を介して接着する。ここではシール材層 1 5 の厚さを 1. 0 mm に設定した。

(5) 次に、外形カットを実施して外形を整えることにより、断面円形状のセ

ラミックフィルタ集合体 3 9 を作製した後、その露出した外周面 3 9 c に兼用ペーストを均一に塗布する。そして、5 0℃～1 0 0℃×1 時間の条件で乾燥・硬化して、厚さ 0. 6 mm の凹凸解消層 1 6 を形成し、集合体 3 9 を完成させた。

そして、上記のようにして得られた集合体 3 9 の各所を肉眼で観察したところ、外周面 3 9 c の凹凸 1 7 は凹凸解消層 1 6 によってほぼ完全に埋められており、外周面 3 9 c はフラットな状態になっていた。また、凹凸解消層 1 6 とフィルタ F 1 との境界部分、凹凸解消層 1 6 とシール材層 1 5 との境界部分のいずれについても、クラックは生じていなかった。従って、これらの境界部分には高い密着性・シール性が確保されていることが示唆された。

そこで、断熱材 1 0 を巻き付けた状態で集合体 3 9 をケーシング 8 内に收容したところ、集合体 3 9 の外周面 9 c には隙間ができなかった。また、実際に排気ガスを供給してみたところ、外周面 3 9 c の隙間を介して下流側に排気ガスがリークしていないことがわかった。従って、第三実施例によれば、排気ガスを効率よく処理できることが明らかとなった。

(実施例 3-2)

実施例 3-2 では、セラミックファイバ（ムライトファイバ、ショット含有率 5 重量％、繊維長さ 0. 1 mm～1 0 0 mm）2 5 重量％、平均粒径 1. 0 μ m の窒化珪素粉末 3 0 重量％、無機バインダとしてのアルミナゾル（アルミナゾルの換算量は 2 0 %）7 重量％、有機バインダとしてのポリビニルアルコール 0. 5 重量％及びアルコール 3 7. 5 重量％を混合・混練したものを、前記兼用ペーストとして使用した。それ以外の事項については実施例 3-1 に順ずるようにして、セラミックフィルタ集合体 3 9 を作製した。

そして、実施例 1 と同様の肉眼観察を行ったところ、外周面 3 9 c の凹凸 1 7 は凹凸解消層 1 6 によってほぼ完全に埋められていた。また、凹凸解消層 1 6 とフィルタ F 1 との境界部分、凹凸解消層 1 6 とシール材層 1 5 との境界部分のいずれについても、クラックは生じていなかった。従って、これらの境界部分には高い密着性・シール性が確保されていることが示唆された。

また、集合体 3 9 の使用時においてその外周面 3 9 c には隙間ができず、しかも隙間を介した排気ガスのリークも起こらないことがわかった。従って、実施例 3-2 も実施例 3-1 と同様に、排気ガスを効率よく処理できることが明らかとなった。

(実施例 3-3)

実施例 3-3 は、セラミックファイバ（アルミナファイバ、ショット含有率 4 重量％、繊維長さ 0.1 mm～100 mm）23 重量％、平均粒径 1 μ m の窒化硼素粉末 35 重量％、無機バインダとしてのアルミナゾル（アルミナゾルの換算量は 20％）8 重量％、有機バインダとしてのエチルセルロース 0.5 重量％及びアセトン 35.5 重量％を混合・混練したものを、兼用ペーストとして使用した。それ以外の事項については実施例 3-1 に順ずるようにして、セラミックフィルタ集合体 3 9 を作製した。

そして、実施例 3-1 と同様の肉眼観察を行ったところ、外周面 3 9 c の凹凸 1 7 は凹凸解消層 1 6 によってほぼ完全に埋められていた。また、凹凸解消層 1 6 とフィルタ F 1 との境界部分、凹凸解消層 1 6 とシール材層 1 5 との境界部分のいずれについても、クラックは生じていなかった。従って、これらの境界部分には高い密着性・シール性が確保されていることが示唆された。

また、集合体 3 9 の使用時においてその外周面 3 9 c には隙間ができず、しかも隙間を介した排気ガスのリークも起こらないことがわかった。従って、実施例 3-3 も実施例 3-1 と同様に、排気ガスを効率よく処理できることが明らかとなった。

(比較例)

比較例では、外周面 3 9 c に凹凸解消層 1 6 を設けないこととし、それ以外の事項については基本的に実施例 3-1 に順ずるようにして、セラミックフィルタ集合体を作製した。

そして、実施例 3-1 と同様の肉眼観察を行ったところ、外周面 3-9 c には凹凸 1 7 が残っていた。ゆえに、集合体の使用時においてその外周面 3-9 c に

は隙間ができ、その隙間を介した排気ガスのリークが起こることが確認された。従って、各実施例 3-1～3-3 と比較して、排気ガスの処理効率に劣ることが明らかであった。

従って、第 3 実施形態のセラミックフィルタ集合体 39 は以下の利点を有する。

(1) 凹凸解消層 16 によって凹凸 17 が埋められることにより、集合体 39 の外周面 9c がフラットである。従って、集合体 39 の収容時にその外周面 39c に隙間ができにくく、排気ガスのリークが防止される。その結果、排気ガスの処理効率に優れたセラミックフィルタ集合体 39、ひいては排気ガスの処理効率に優れた排気ガス浄化装置 1 を実現することができる。

また、凹凸解消層 16 はセラミック質からなるので、同じく多孔質セラミック焼結体からなるフィルタ F1 との密着性及び耐熱性にも優れている。従って、集合体 39 が数百℃の高温に晒されたとしても、凹凸解消層 16 が焼失・変質するようなことがなく、好適な密着強度も維持される。

(2) 凹凸解消層 16 の厚さが 0.1 mm～10 mm の好適範囲内に設定されているため、集合体 39 の製造を困難にすることなく、排気ガスのリークを確実に防止することができる。

(3) シール材層 15 が凹凸解消層 16 よりも薄いため、濾過能力及び熱伝導性の低下が未然に防止される。

(4) シール材層 15 と同じ材料を用いて凹凸解消層 16 を形成しているため、凹凸解消層 16 とシール材層 15 との熱膨張係数が等しくなる等の理由により、両者 15, 16 の境界部分にクラックが生じにくくなる。つまり、当該境界部分に高い接着性、シール性、信頼性が確保される。

また、シール材層形成用ペーストとは別に、凹凸解消層形成用ペーストを用意する必要がないので、集合体 39 の製造が容易になり、製造コストの増大が回避される。

(5) シール材層 15 及び凹凸解消層 16 を形成するための材料として、次のよ

うなものが用いられる。即ち、少なくとも無機繊維、無機バインダ、有機バインダ及び無機粒子からなり、かつ三次元的に交錯する前記無機繊維と無機粒子とを、前記無機バインダ及び有機バインダを介して互いに結合してなる弾性質素材が用いられる。

このような材料には下記のような利点がある。即ち、低温域及び高温域の両方において十分な接着強度を期待することができる。また、この材料は弾性質素材であることから、集合体 39 に熱応力が加わるときでも、その熱応力を確実に開放することができる。さらに、この材料は熱伝導性に優れるため、熱が集合体 39 の全体に均一にかつ速やかに伝導しやすく、効率のよい排気ガス処理を実現することができる。

なお、本発明の第三実施形態は以下のように変更してもよい。

(イ) 図 15 に示されるように、セラミックフィルタ集合体 321 では、フィルタ軸線方向に直交する方向に沿って各フィルタ F1 を互いにずらした状態で配置してもよい。

(ロ) 凹凸解消層 16 はシール材層 15 とは異種のセラミック材料を用いて形成されていてもよい。

(ハ) 凹凸解消層 16 はシール材層 15 と等しい厚さを有していてもよく、さらにはシール材層 15 よりも大きな厚さをゆうしていてもよい。

(ニ) 凹凸解消層 16 は、塗布法にみならず、例えば印刷法、焼き付け法、デ IPP 法、カーテンコート法等を採用して形成してもよい。

図 16 は、本発明の第四実施形態のセラミックフィルタ集合体 49 の概略的な斜視図である。セラミックフィルタ集合体 49 は、複数の四角柱状のハニカムフィルタ F100 からなる。

ここで、各ハニカムフィルタ F100 において、被処理流体である排気ガスの流れ方向（フィルタ端面に対して直交する方向）に沿った寸法を、フィルタ長さ L (mm) と定義する。また、各ハニカムフィルタ F100 をその流れ方向に対して垂直に切断したとき（言い換えるとフィルタ端面に対して平行に切断したと

き)の面積を、フィルタ断面積 S (mm^2)と定義する。

この場合、 L/S 値を $0.06 \text{ mm/mm}^2 \sim 0.75 \text{ mm/mm}^2$ とすることが必要である。なお、 L/S の値は $0.10 \text{ mm/mm}^2 \sim 0.60 \text{ mm/mm}^2$ であることが望ましく、 $0.15 \text{ mm/mm}^2 \sim 0.40 \text{ mm/mm}^2$ であることが最も望ましい。

L/S 値が 0.75 mm/mm^2 を超えると、フィルタ長さ方向に沿って温度差が生じ、その結果、ハニカムフィルタF100に大きな熱応力が働き、クラックが発生しやすくなる。逆に、 L/S 値が 0.06 mm/mm^2 未満であると、フィルタ長さ方向に直交する方向に沿って温度差が生じ、この結果、ハニカムフィルタF100に大きな熱応力が働き、やはりクラックが発生しやすくなる。

フィルタ長さ L は具体的には $120 \text{ mm} \sim 300 \text{ mm}$ であることが好ましく、特に $140 \text{ mm} \sim 200 \text{ mm}$ であることがより好ましい。フィルタ断面積 S は具体的には $400 \text{ mm}^2 \sim 2500 \text{ mm}^2$ であることが好ましく、特に $600 \text{ mm}^2 \sim 2000 \text{ mm}^2$ であることがより好ましい。 L や S の値が上記好適範囲外であると、ハニカムフィルタF100内に温度差が生じ、この結果、大きな熱応力が働きやすくなる。

(実施例4-1)

基本的には実施例1-1と同様に集合体49を製造した。ただし、各ハニカムフィルタF100のたて寸法 $W1$ は 33 mm 、よこ寸法 $W2$ は 33 mm 、長さ L は 167 mm とした。従って、フィルタ断面積 S は 1089 mm^2 となり、 L/S の値は $(167/1089=)0.15 \text{ mm/mm}^2$ となった。

次に、集合体49に断熱材10を巻き付け、この状態で集合体49をケーシング8内に収容し、実際に排気ガスを供給した。

そして、図18(A)、図18(B)に示されるように、ハニカムフィルタF100の各位置P1～P6に熱電対を埋め込み、各位置における温度 $T1 \sim T6$ を経時的に測定するとともに、各位置P1～P6における最大温度差 ΔT ($^{\circ}\text{C}$)を求めた。図中の白抜き矢印は、排気ガスの流れ方向を示す。なお、上記の温度測定

は、図 16 において符号 X で示すハニカムフィルタ F 100 について実施した。

そして、一定期間経過した後に集合体 49 を取り出して各ハニカムフィルタ F 100 の肉眼観察を行い、クラックの発生状況を調査した。その結果、実施例 4-1 では最大温度差 ΔT (°C) が約 5°C であり、その値は極めて小さいものであった。また、いずれのハニカムフィルタ F 100 についてもクラックの発生は認められなかった。

(実施例 4-2 ~ 4-6)

実施例 4 ~ 6 においても、基本的には実施例 4-1 と同様に集合体 49 を製造することとした。ただし、実施例 4-2 では、各ハニカムフィルタ F 100 のたて寸法 W1 を 50 mm に、よこ寸法 W2 を 50 mm に、長さ L を 150 mm にそれぞれ設定した。従って、フィルタ断面積 S は 2500 mm^2 となり、 L/S の値は ($150/2500 =$) 0.06 mm/mm^2 となった。

実施例 4-3 では、たて寸法 W1 を 20 mm に、よこ寸法 W2 を 20 mm に、長さ L を 300 mm にそれぞれ設定した。従って、フィルタ断面積 S は 400 mm^2 となり、 L/S の値は ($300/400 =$) 0.75 mm/mm^2 となった。

実施例 4-4 では、たて寸法 W1 を 33 mm に、よこ寸法 W2 を 33 mm に、長さ L を 230 mm にそれぞれ設定した。従って、フィルタ断面積 S は 1089 mm^2 となり、 L/S の値は ($230/1089 =$) 0.21 mm/mm^2 となった。

実施例 4-5 では、たて寸法 W1 を 25 mm に、よこ寸法 W2 を 25 mm に、長さ L を 300 mm にそれぞれ設定した。従って、フィルタ断面積 S は 625 mm^2 となり、 L/S の値は ($300/625 =$) 0.48 mm/mm^2 となった。

実施例 4-6 では、たて寸法 W1 を 22 mm に、よこ寸法 W2 を 22 mm に、長さ L を 300 mm にそれぞれ設定した。従って、フィルタ断面積 S は 484 mm^2 となり、 L/S の値は ($300/484 =$) 0.62 mm/mm^2 となった。

上記のようにして得られた 5 種の集合体 59 について、実施例 4-1 と同様の試験を行った。その結果、最大温度差 ΔT (°C) は 0°C ~ 10°C 程度であり、その値は極めて小さいものであった。また、いずれのハニカムフィルタ F 100 に

についてもクラックの発生は認められなかった。

(比較例 1)

比較例 1 においても、基本的には実施例 4-1 と同様に集合体 49 を製造することとした。ただし、各ハニカムフィルタ F 100 のたて寸法 W1 を 20 mm に、よこ寸法 W2 を 20 mm に、長さ L を 400 mm にそれぞれ設定した。従って、フィルタ断面積 S は 400 mm^2 となり、 L/S の値は $(400/400) = 1.0 \text{ mm/mm}^2$ となった。

上記のようにして得られた集合体 49 について、実施例 4-1 と同様の試験を行った。その結果、最大温度差 ΔT ($^{\circ}\text{C}$) は約 30°C 程度であり、各実施例のときよりも確実に大きくなっていた。特に、比較例 1 では長さ L を極めて大きく設定していることから、フィルタ長さ方向に沿って温度差がしやすい傾向にあった。

また、いくつかのハニカムフィルタ F 100 ではクラックの発生が認められ、ハニカムフィルタ F 100 の破壊に至っていた。

(比較例 2)

比較例 2 においても、基本的には実施例 4-1 と同様に集合体 49 を製造することとした。ただし、たて寸法 W1 を 70 mm に、よこ寸法 W2 を 70 mm に、長さ L を 167 mm にそれぞれ設定した。従って、フィルタ断面積 S は 4900 mm^2 となり、 L/S の値は $(167/4900) = 0.03 \text{ mm/mm}^2$ となった。

上記のようにして得られた集合体 49 について、実施例 1 と同様の試験を行った。その結果、最大温度差 ΔT ($^{\circ}\text{C}$) は約 20°C 程度であり、各実施例のときよりも確実に大きくなっていた。特に、比較例 2 ではフィルタ断面積 S を極めて大きく設定していることから、フィルタ長さ方向に直交する方向に沿って温度差がしやすい傾向があった。また、いくつかのハニカムフィルタ F 100 ではクラックの発生が認められ、ハニカムフィルタ F 100 の破壊に至っていた。

従って、第四実施形態のセラミックフィルタ集合体 49 は以下の利点を有する

。

(1) フィルタ長さ L とフィルタ断面積 S との比 L/S を上記好適範囲内に設定することにより、集合体49の使用時において、個々のハニカムフィルタF100内に大きな温度差が生じることがなく、大きな熱応力の発生が防止される。よって、ハニカムフィルタF100におけるクラックの発生が防止され、ハニカムフィルタF100が破壊しにくくなる。このように個々のハニカムフィルタF100の強度向上が図られる結果、優れた強度を有するセラミックフィルタ集合体49を製造することができる。また、この集合体49を用いることによって、高強度かつ長期間使用可能な排気ガス浄化装置1を実現することができる。

なお、第四実施形態は以下のように変更してもよい。

(イ) ハニカムフィルタF100の形状は、 L/S の値が $0.06\text{ mm/mm}^2 \sim 0.75\text{ mm/mm}^2$ の条件が満たされれば、円柱状、三角柱状又は六角柱状に変更されてもよい。

(ロ) ハニカムフィルタF100は、セラミックフィルタ集合体49の構成部材として使用されてもよいほか、それ自身単体のフィルタとして使用されてもよい。

図19は、本発明の第五実施形態の、ハニカム構造を備えたハニカムフィルタ59の斜視図である。図20は、図19のフィルタ59の20-20線に沿った断面図である。図21は排気ガス浄化装置の要部拡大断面図である。

ハニカムフィルタ59のセルの密度は 120 個/inch^2 (18 個/cm^2)以上、より具体的には $120 \sim 180\text{ 個/inch}^2$ の範囲であることが好ましい。セルの密度が 120 個未満であると、排気ガスとの接触面積が小さくなるため、ハニカムフィルタ9の浄化性能が低下する。

セル壁13の厚みは 0.46 mm 以下、より具体的には $0.20 \sim 0.46\text{ mm}$ の範囲であることが好ましい。セル壁13の厚みが 0.46 mm を超えると、セルの開口面積が小さくなり、排気ガスとの接触面積が小さくなるため、ハニカムフィルタ9の浄化性能が低下する。又、セルの開口面積を確保しつつ、セル壁13の厚みを 0.46 mm よりも大きくすれば、ハニカムフィルタ9全体の大型

化につながる。

ハニカムフィルタ 9 の平均気孔径は $5\ \mu\text{m} \sim 15\ \mu\text{m}$ 、さらには $8\ \mu\text{m} \sim 12\ \mu\text{m}$ であることが好ましい。平均気孔径が $5\ \mu\text{m}$ 未満であると、パティキュレートの堆積によるハニカムフィルタ 9 の目詰まりが著しくなる。そのため、圧力損失が大きくなるので、車両の運転条件を妨げ、燃費の悪化、運転フィーリングの悪化を招く。一方、平均気孔径が $50\ \mu\text{m}$ を越えると、細かい微粒子を捕集することができなくなり、捕集効率が低下し、パティキュレートの濾過機能が損なわれる。

ハニカムフィルタ 9 の気孔率は $30\% \sim 50\%$ 、さらには $35\% \sim 49\%$ であることが好ましい。気孔率が 30% 未満であると、ハニカムフィルタ 9 が緻密になりすぎてしまい、内部に排気ガスを流通させることができなくなるおそれがある。一方、気孔率が 50% を越えると、ハニカムフィルタ 9 中に空隙が多くなりすぎて、強度的に弱くなり、かつ微粒子の捕集効率が低下するおそれがある。

ハニカムフィルタ 9 に形成されている気孔のうち 20% 以上、より具体的にいうと $20\% \sim 80\%$ 、特には $20\% \sim 50\%$ が貫通気孔であることが好ましい。ここでいう貫通気孔とは、セル壁 13 に形成され、隣接する通気孔 12 同士を連通させる空隙部分を意味する。貫通気孔が気孔の 20% 未満であると、圧力損失が大きくなるので、車両の運転条件を妨げ、燃費の悪化、運転フィーリングの悪化を招くからである。一方、貫通気孔が気孔の 80% を超えると、事実上製造が困難になるおそれがあり、安定的な材料供給が難しくなる。

ハニカムフィルタ 9 は、その総体積が内燃機関における総排気量の $1/4 \sim 2$ 倍、さらには $1/2 \sim 1.5$ 倍であることが好ましい。 $1/4$ 倍未満であると、パティキュレートの堆積量が多くなり、ハニカムフィルタ 9 の目詰まりが著しくなる。一方、 2 倍を超えると、ハニカムフィルタ 9 が大型化する。ハニカムフィルタ 9 を大型化した場合、燃焼時にフィルタ 9 の各部分間で温度差が生じ易く、それによってハニカムフィルタ 9 に働く熱応力が増大し、クラックが発生する確率が高くなる。

ハニカムフィルタ 9 は、セラミック焼結体の一種である多孔質炭化珪素焼結体製である。多孔質炭化珪素焼結体に含まれる不純物は、5 重量%以下に抑えられている。不純物の量は 1 重量%以下であることがよく、0.1 重量%以下であることが特によい。不純物が 5 重量%を超えると、炭化珪素結晶粒子の粒界に不純物が偏り、粒界での強度（結晶粒子間の結合強度）が著しく低下し、粒界破断しやすくなる。なお、不純物としては、Al、Fe、O 又は遊離 C を含む。封止体 14 は、ハニカムフィルタ 9 と同じ多孔質炭化珪素焼結体製である。

（実施例 5-1）

基本的には実施例 4-1 と同様にして生成形体をマイクロ波乾燥機を用いて乾燥した後、成形形体の通気孔 12 を多孔質炭化珪素焼結体製の封止用ペーストによって封止した。次いで、再び乾燥機を用いて封止用ペーストを乾燥させた。端面封止工程に続いて、この乾燥体を 400℃で脱脂した後、さらにそれを常圧のアルゴン雰囲気下において 2250℃で約 3 時間焼成した。

その結果、気孔径が 10 μm 、気孔率が 42%、気孔に対する貫通気孔の存在率が 25%、セルの密度が 150 個/ inch^2 、セル壁 13 の厚みが 0.4 mm である多孔質炭化珪素焼結体製のハニカムフィルタ 59 を得た。このハニカムフィルタ 59 は、直径が 100 mm、長さが 200 mm、総体積が 2300 cm^3 である。総体積とは、ハニカムフィルタ 59 全体の体積から通気孔 12 の体積を差し引いた体積をいう。セル壁 13 の厚みは 0.46 mm 以下、より具体的には 0.20~0.46 mm の範囲であることが好ましい。

次に、ハニカムフィルタ 59 に断熱材 10 を巻き付け、この状態でハニカムフィルタ 59 をケーシング 8 内に収容した。そして、排気量が約 3000 cc のエンジンを用いて、排気ガス浄化装置 1 に流速 7 m/sec の排気ガスを供給した。そして、このときのハニカムフィルタ 59 の上流側における排気ガスの圧力値と、下流側における排気ガスの圧力値とを測定した。そして、これらの値の差である圧力損失 ΔP (mmAq) を求めた。又、トラップできなかったパーティキュレートの量を調査するために、ハニカムフィルタ 59 の後方にてスス量を測定し

た。更に、一定期間経過した後にハニカムフィルタ 5 9 を取り出してその肉眼観察を行い、クラックの発生状況を調査した。この調査結果を、表 1 に示す。

表 1

	セラミックの種類	平均気孔径 (μm)	平均気孔率 (%)	貫通気孔の 存在率 (%)	圧力損失 ΔP (mmAq)	フィルター後方の スス量 (g/km)	曲げ強度 (MPa)	フィルタの 総体積 (cm^3)	クラックの有無
実施例 1	炭化珪素	10	42	25	80	0.01	6.5	2300	無
実施例 2	炭化珪素	6	38	30	100	0.01	6.2	2300	無
実施例 3	炭化珪素	14	48	45	60	0.015	6.0	2300	無
比較例 1	炭化珪素	3	10	10	300	0.005	7.2	700	無
比較例 2	炭化珪素	20	70	15	40	0.04	2.5	7000	有
比較例 3	コーゾーライト	30	20	15	120	0.015	3.1	700	有

表 1 に示されるように、実施例 5-1 では圧力損失 ΔP が約 80 mmAq であり、その値は極めて小さいものであった。パーティキュレートの漏れ量は、 0.01 g/km であり、その値は極めて小さいものであった。ハニカムフィルタ 9 の曲げ強度は 6.5 MPa であり、極めて高い機械的強度が付与されていた。ハニカムフィルタ 9 にクラックの発生は認められなかった。

(実施例 5-2, 5-3)

実施例 5-2, 5-3 においても、基本的には実施例 5-1 と同様にハニカムフィルタ 5 9 を製造することとした。ただし、実施例 5-2, 5-3 では、ハニカムフィルタ 5 9 の総体積のみを実施例 5-1 と同じにした。又、形成材料の配合比、焼成温度、焼成時間等を変更することにより、ハニカムフィルタ 5 9 の気孔径、気孔率、気孔に対する貫通気孔の存在率を以下のように調整した。

すなわち、実施例 5-2 では、気孔径が $6 \mu\text{m}$ 、気孔率が 32% 、貫通気孔の存在率が 30% である多孔質炭化珪素焼結体製のハニカムフィルタ 5 9 を得た。そして、実施例 5-1 と同様の試験を行ったところ、圧力損失 ΔP が約 100 mmAq

m A q であり、その値は極めて小さいものであった。パティキュレートの漏れ量は、 0.01 g/km であり、その値は極めて小さいものであった。ハニカムフィルタ 59 の曲げ強度は 6.2 Mpa であり、高い機械的強度が付与されていた。更に、ハニカムフィルタ 59 にクラックの発生は認められなかった。

実施例 5-3 では、気孔径が $14 \mu\text{m}$ 、気孔率が 48%、貫通気孔の存在率が 45% である多孔質炭化珪素焼結体製のハニカムフィルタ 59 を得た。この実施例の試験結果は、圧力損失 ΔP が約 60 mmAq であり、その値は極めて小さいものであった。パティキュレートの漏れ量は、 0.015 g/km であり、その値は極めて小さいものであった。ハニカムフィルタ 59 の曲げ強度は 6.0 Mpa であり、高い機械的強度が付与されていた。ハニカムフィルタ 59 にクラックの発生は認められなかった。

(比較例 1～3)

比較例 1～3 においても、基本的には実施例 5-1 と同様にハニカムフィルタを製造することとした。ただし、比較例 1 では、ハニカムフィルタの総体積を排気量 (3000 cc) の $1/4$ 倍未満である 700 cm^3 とした。又、ハニカムフィルタの気孔径、気孔率、気孔に対する貫通気孔の存在率を以下のようにした。

比較例 1 では、気孔径が $3 \mu\text{m}$ 、気孔率が 10%、貫通気孔の存在率が 10% である多孔質炭化珪素焼結体製のハニカムフィルタを得た。比較例 1 の試験結果は、圧力損失 ΔP が約 300 mmAq であり、その値は極めて大きいものであった。パティキュレートの漏れ量は、 0.005 g/km であり、その値は極めて小さいものであった。ハニカムフィルタの曲げ強度は 7.2 Mpa であり、高い機械的強度が付与されていた。ハニカムフィルタにクラックの発生は認められなかった。

比較例 2 では、ハニカムフィルタの総体積を実施例 1～3 よりも大きい、すなわち排気量 (3000 cc) の 2 倍以上である 7000 cm^3 とした。又、気孔径が $20 \mu\text{m}$ 、気孔率が 70%、貫通気孔の存在率が 15% である多孔質炭化珪

素焼結体製のハニカムフィルタを得た。比較例 2 の試験結果は、圧力損失 ΔP が約 40 mmAq であり、その値は極めて小さいものであった。パティキュレート
の漏れ量は、0.04 g/km であり、その値は極めて大きいものであった。ハ
ニカムフィルタの曲げ強度は 2.5 Mpa であり、十分な機械的強度を得ること
ができなかった。ハニカムフィルタにクラックの発生が認められた。

比較例 3 では、前記比較例 1, 2 と異なり、公知である製造方法によってコー
ジェライト製のハニカムフィルタを得た。そして、このハニカムフィルタの総体
積は 700 cm³ であった。又、ハニカムフィルタは、気孔径が 30 μ m、気孔
率が 20%、貫通気孔の存在率が 15% であった。比較例 3 の試験結果は、圧力
損失 ΔP が約 120 mmAq であり、その値は大きいものであった。パティキュ
レートの漏れ量は、0.015 g/km であり、その値は大きいものであった。
ハニカムフィルタの曲げ強度は 3.1 Mpa であり、十分な機械的強度を得るこ
とができなかった。ハニカムフィルタにクラックの発生が認められた。

以上のように、実施例 5-1 ~ 5-3、比較例 1 ~ 3 について比較検討した結
果は上記表 1 に示されている。

(試験結果)

表 1 から明らかなように、実施例 5-1 ~ 5-3 では、いずれも排気ガスがハ
ニカムフィルタ 59 をスムーズに通過することが認められた。又、パティキュレ
ートの漏れ量がほとんどないとともに、ハニカムフィルタ 59 の機械的強度を確
保することができた。これに対し、比較例 1 では、ハニカムフィルタの機械的強
度を確保することはできた。しかし、排気ガスがハニカムフィルタをスムーズに
通過することが認められなかった。又、比較例 2 では、排気ガスがハニカムフィ
ルタをスムーズに通過することが認められた。しかし、ハニカムフィルタの機械
的強度を確保することはできなかった。更に、比較例 3 では、排気ガスがハニカ
ムフィルタをスムーズに通過することが認められないとともに、ハニカムフィル
タの機械的強度を確保することもできなかった。

従って、第五実施形態のハニカムフィルタ 59 は以下の利点を有する。

(1) ケーシング 8 内には、多孔質炭化珪素焼結体製のハニカムフィルタ 5 9 が設けられている。ハニカムフィルタ 9 は、その平均気孔径が $5 \sim 15 \mu\text{m}$ 、平均気孔率が $30 \sim 40\%$ 、気孔に対する貫通気孔の存在率が 20% 以上に設定されている。そのため、ハニカムフィルタ 9 が緻密になりすぎないので、内部に排気ガスをスムーズに通過させることができ、圧力損失を小さくすることができる。従って、燃費が向上し、運転フィーリングの悪化が防止される。又、ハニカムフィルタ 9 の空隙量が多くなりすぎないので、細かいパーティキュレートを確実に捕集することができ、捕集効率が向上する。更に、ハニカムフィルタ 9 が多孔質であったとしても十分な機械的強度を確保することができる。よって、振動や熱衝撃により破壊しにくいハニカムフィルタ 9 を得ることができる。

(2) ハニカムフィルタ 9 は、その平均気孔径が $8 \sim 12 \mu\text{m}$ 、平均気孔率が $35 \sim 49\%$ 、気孔に対する貫通気孔の存在率が $20 \sim 50\%$ 以上に設定されている。そのため、圧力損失をよりいっそう低くすることができるとともに、強度も確実に向上することができる。

(3) ハニカムフィルタ 9 の両端面には、封止体 1 4 により交互に封止されたセルが形成されている。セルの数が単位平方インチあたり 120 個以上、かつセル壁 1 3 の厚みが 0.46 mm 以下に設定されている。そのため、排気ガスとの接触面積が大きくなり、ハニカムフィルタ 9 の浄化性能が向上する。

(4) ハニカムフィルタ 9 の総体積がディーゼルエンジン 2 における総排気量の $1/4 \sim 2$ 倍に設定されている。そのため、パーティキュレートの堆積量が多くなりすぎないので、ハニカムフィルタ 9 の目詰まりが防止される。又、ハニカムフィルタ 9 が大型化することがないので、燃焼時にハニカムフィルタ 9 の各部分間で温度差が生じるのが防止される。よってハニカムフィルタ 9 に働く熱応力を低減でき、クラックが発生するのを確実に防止することができる。

なお、第五実施形態は以下のように変更してもよい。

(イ) ハニカムフィルタ 9 の形状は、円柱状に限定されることはなく、三角柱状、四角柱状、六角柱状等に変更されてもよい。

(ロ) 図 22 に示されるように、複数個（ここでは 16 個）のハニカムフィルタ 523 を一体化することにより 1 つのセラミックフィルタ集合体 521 を製造してもよい。各角柱状ハニカムフィルタ 523 は、平均気孔径が $8 \sim 12 \mu\text{m}$ かつ平均気孔率が $35 \sim 49\%$ であり、気孔の $20 \sim 50\%$ が貫通気孔である。ハニカムフィルタ 523 の外周面は、互いにセラミック質シール材層 522 を介して接着されている。

次に、本発明の第六実施形態のハニカムフィルタについて図 19 ～ 図 21 に従って説明する。

第六実施形態では、ハニカムフィルタ 59 のセル壁 13 を構成する粒子の比表面積は $0.1 \text{ m}^2/\text{g}$ 以上、より具体的にいうと $0.1 \sim 1 \text{ m}^2/\text{g}$ に設定されている。セル壁 13 の比表面積が $0.1 \text{ m}^2/\text{g}$ 以下であると、パティキュレート の堆積によるハニカムフィルタ 59 の目詰まりが著しくなる。そのため、圧力損失が大きくなるので、車両の燃費の悪化、運転フィーリングの悪化を招く。一方、比表面積が $1.0 \text{ m}^2/\text{g}$ を超えると、細かい微粒子を捕集することができなくなるため、捕集効率が低下し、ハニカムフィルタ 59 の濾過機能が損なわれる。

(実施例 6-1)

基本的には実施例 5-1 と同様にセル壁 13 を構成する粒子の比表面積が $0.3 \text{ m}^2/\text{g}$ であるハニカムフィルタ 59 を製造した。又、実施例 6-2、比較例においても、基本的に実施例 5-1 と同じ方法でハニカムフィルタ 59 を成形した。そして、比表面積が $0.8 \text{ m}^2/\text{g}$ 、 $0.05 \text{ m}^2/\text{g}$ であるハニカムフィルタ 59 を製造し、これを実施例 6-2、比較例とした。なお、実施例 6-1、6-2 及び比較例のハニカムフィルタ 59 は、それぞれセルの密度が $150 \text{ 個}/\text{inch}^2$ 、セル壁 13 の厚みが 0.4 mm であった。

次に、ハニカムフィルタ 59 に断熱材 10 を巻き付け、この状態でハニカムフィルタ 59 をケーシング 8 内に収容した。そして、排気量が約 3000 cc のディーゼルエンジン 2 を用いて、 $9 \text{ m}/\text{s}$ の流速にて排気ガス浄化装置 1 に排気ガ

スを供給した。そして、このときのハニカムフィルタ 5 9 の上流側における排気ガスの圧力値と、下流側における排気ガスの圧力値とを測定した。そして、これらの値の差である圧力損失 ΔP (mmAq) を求めた。この結果を以下の表 2 に示す。

表 2

	実施例 1	実施例 2	比較例
比表面積 (cm^2/g)	0.3	0.8	0.05
パティキュレートの 圧力損失 (mmAq)	180	120	250

上記の表 2 から明らかなように、実施例 6-1、6-2 及び比較例のハニカムフィルタ 5 9 において、圧力損失 ΔP は、それぞれ 180 mmAq、120 mmAq であり、比較例では 250 mmAq であった。従って、実施例 6-1、6-2 では比較例のような大きな圧力損失は見られなかった。

従って、第六実施形態のハニカムフィルタ 5 9 は以下の利点を有する。

(1) ハニカムフィルタ 9 のセル壁 1 3 を構成する粒子の比表面積が $0.1 \text{ m}^2/\text{g}$ 以上に設定されている。そのため、ハニカムフィルタ 9 が緻密になりすぎないので、内部に排気ガスをスムーズに通過させることができ、圧力損失を小さくすることができる。従って、燃費が向上し、運転フィーリングの悪化が防止される。しかも、粒子の比表面積の上限が $1.0 \text{ m}^2/\text{g}$ に設定されている。そのため、ハニカムフィルタ 9 の空隙量が多くなりすぎず、細かいパティキュレートを確実に捕集することができ、捕集効率が向上する。

(2) 炭化珪素焼結体製のセル壁 1 3 は耐熱性に優れているため、セル壁 1 3 の変質や焼失が防止される。従って、長期間にわたって効率のよい流体の浄化を行うことができる。

(3) 多孔質体からなるセル壁 1 3 は、排気ガスをよりいっそうスムーズに

通過させることができ、さらなる圧力損失の低減に貢献することができる。それとともに、パティキュレートの捕集効率をいっそう高めることができる。

なお、第六実施形態は以下のように変更してもよい。

複数個（ここでは16個）のハニカムフィルタを一体化することにより1つのセラミックフィルタ集合体を製造してもよい。各ハニカムフィルタのセル壁の比表面積は、 $0.1 \sim 1 \text{ m}^2/\text{g}$ に設定されている。

産業上の利用可能性

本発明のセラミックフィルタ集合体は、ディーゼルエンジン2に取り付けられる排気ガス浄化装置用フィルタ、熱交換器用部材、高温流体や高温蒸気のための濾過フィルタ等に利用可能である。

請求の範囲

1. 各々が多孔質セラミック焼結体からなる複数のフィルタ (F 1) の外周面をセラミック質シール材層 (1 5) を介して接着することにより一体化されたセラミックフィルタ集合体 (9) であって、

前記シール材層 (1 5) は、0. 3 mm～3 mmの厚さ (t 1) を有し、かつ 0. 1 W/mK～1 0 W/mKの熱伝導率を有していることを特徴とするセラミックフィルタ集合体。

2. 請求項 1 に記載のセラミックフィルタ集合体において、前記シール材層は、固形分で7 0重量%以下のセラミックファイバを含有する。

3. 請求項 1 または 2 に記載のセラミックフィルタ集合体において、前記シール材層は、1 0 0 mm以下の繊維長を有するセラミックファイバを含有する。

4. 請求項 1 乃至 3 のいずれか 1 項に記載のセラミックフィルタ集合体において、前記シール材層は、固形分で3 重量%～8 0 重量%の無機粒子を含有する。

5. 各々がセラミック焼結体からなる複数の角柱状ハニカムフィルタ (F 1 0) の外周面をセラミック質シール材層 (1 5) を介して接着することにより一体化されたセラミックフィルタ集合体 (2 9) であって、

各ハニカムフィルタの外周面における角部は、面取りが施されたアール面 (1 8) を有し、そのアール面は0. 3～2. 5の曲率Rを有することを特徴とするセラミックフィルタ集合体。

6. 各々が多孔質セラミック焼結体からなる複数のフィルタ (F 1) の外周

面をセラミック質シール材層（１５）を介して接着することにより一体化されたセラミックフィルタ集合体（３９）であって、

全体として断面略円形状または断面略楕円形状を有する集合体の外周面に形成され、セラミック質からなる凹凸解消層（１６）を備えることを特徴とするセラミックフィルタ集合体。

７． 請求項６に記載のセラミックフィルタ集合体において、前記凹凸解消層は０．１ｍｍ～１０ｍｍの厚さを有する。

８． 請求項６または７に記載のセラミックフィルタ集合体において、前記シール材層は前記凹凸解消層よりも薄い。

９． 請求項６乃至８のいずれか１項に記載のセラミックフィルタ集合体において、前記凹凸解消層は前記シール材層と同じ材料からなる。

１０． 各々が多孔質セラミック焼結体からなる複数の柱状ハニカムフィルタ（Ｆ１００）の外周面をセラミック質シール材層（１５）を介して接着することにより一体化されたセラミックフィルタ集合体（４９）であって、

被処理流体の流れ方向に沿ったフィルタ長さ L と、その流れ方向に対して直交する方向におけるフィルタ断面積 S との比 L/S が、 $0.06\text{ mm/mm}^2 \sim 0.75\text{ mm/mm}^2$ であることを特徴とするセラミックフィルタ集合体。

１１． 請求項１乃至１０のいずれか１つに記載のセラミックフィルタ集合体において、前記集合体はディーゼルパーティキュレートフィルタである。

１２． 請求項１乃至１１のいずれか１つに記載のセラミックフィルタ集合体において、前記フィルタは、多孔質炭化珪素焼結体からなる。

13. 請求項1乃至12のいずれか1つに記載のセラミックフィルタ集合体において、前記シール材層は、少なくとも無機繊維、無機バインダ、有機バインダ及び無機粒子からなり、かつ三次元的に交錯する前記無機繊維と無機粒子とを、前記無機バインダ及び有機バインダを介して互いに結合してなる弾性質素材からなる。

14. 請求項1乃至13のいずれか1つに記載のセラミックフィルタ集合体において、前記シール材層は、固形分で10重量%～70重量%のシリカーアルミナセラミックファイバ、1重量%～30重量%のシリカゾル、0.1重量%～5.0重量%のカルボメトキシセルロース及び3重量%～80重量%の炭化珪素粉末からなる。

15. 請求項1乃至14のいずれか1つに記載のセラミックフィルタ集合体において、前記フィルタは、フィルタ軸線方向に直交する方向に沿って互いにずらした状態で配置されている。

16. 各々がセル壁(13)によって区画された複数のセルを有し、前記セル壁によってパーティキュレートを含む流体を浄化する複数のハニカムフィルタ(523)の外周面をセラミック質シール材層(522)を介して接着することにより一体化されたハニカムフィルタ集合体(521)であって、

前記セル壁を構成する粒子の比表面積が $0.1 \text{ m}^2/\text{g}$ 以上であることを特徴とするハニカムフィルタ集合体。

17. 多孔質セラミック焼結体からなる柱状ハニカムフィルタ(F100)であって、

被処理流体の流れ方向に沿ったフィルタ長さLと、その流れ方向に対して直交

する方向におけるフィルタ断面積 S との比 L/S が、 $0.06 \text{ mm/mm}^2 \sim 0.75 \text{ mm/mm}^2$ であることを特徴とするハニカムフィルタ。

18. 多孔質セラミック焼結体からなるハニカムフィルタ (59) において、

ハニカムフィルタの平均気孔径が $5 \sim 15 \mu\text{m}$ で、平均気孔率が $30 \sim 50\%$ であり、ハニカムフィルタは 20% 以上の貫通気孔を有することを特徴とするハニカムフィルタ。

19. 請求項 18 に記載のハニカムフィルタにおいて、平均気孔径が $8 \sim 12 \mu\text{m}$ かつ平均気孔率が $35 \sim 49\%$ であり、貫通気孔の比率が $20 \sim 50\%$ である。

20. 請求項 18 又は 19 に記載のハニカムフィルタにおいて、第 1 の端面が封止体 (14) により封止された第 1 のセルと、第 1 のセルにセル壁を介して隣接し、第 1 の端面とは反対側の第 2 の端面が封止体により封止された第 2 のセルとを含む複数のセルを備え、セル数が単位平方インチあたり 120 個以上であるとともに、前記セルを区画するセル壁の厚みが 0.46 mm 以下である。

21. セル壁 (13) によって区画された複数のセルを有し、前記セル壁によってパティキュレートを含む流体を浄化するハニカムフィルタ (59) において、

前記セル壁を構成する粒子の比表面積が $0.1 \text{ m}^2/\text{g}$ 以上であることを特徴とするハニカムフィルタ。

22. 請求項 21 に記載のハニカムフィルタにおいて、前記セル壁は、炭化珪素焼結体からなる。

23. 請求項21又は22に記載のハニカムフィルタにおいて、前記セル壁は、多孔質体からなる。

24. 内燃機関(2)の排気経路に設けられたケーシング(8)内に配置され、排気ガス中に含まれるパティキュレートを除去する多孔質セラミック焼結体製のハニカムフィルタ(59)を備えた排気ガス浄化装置(1)において、

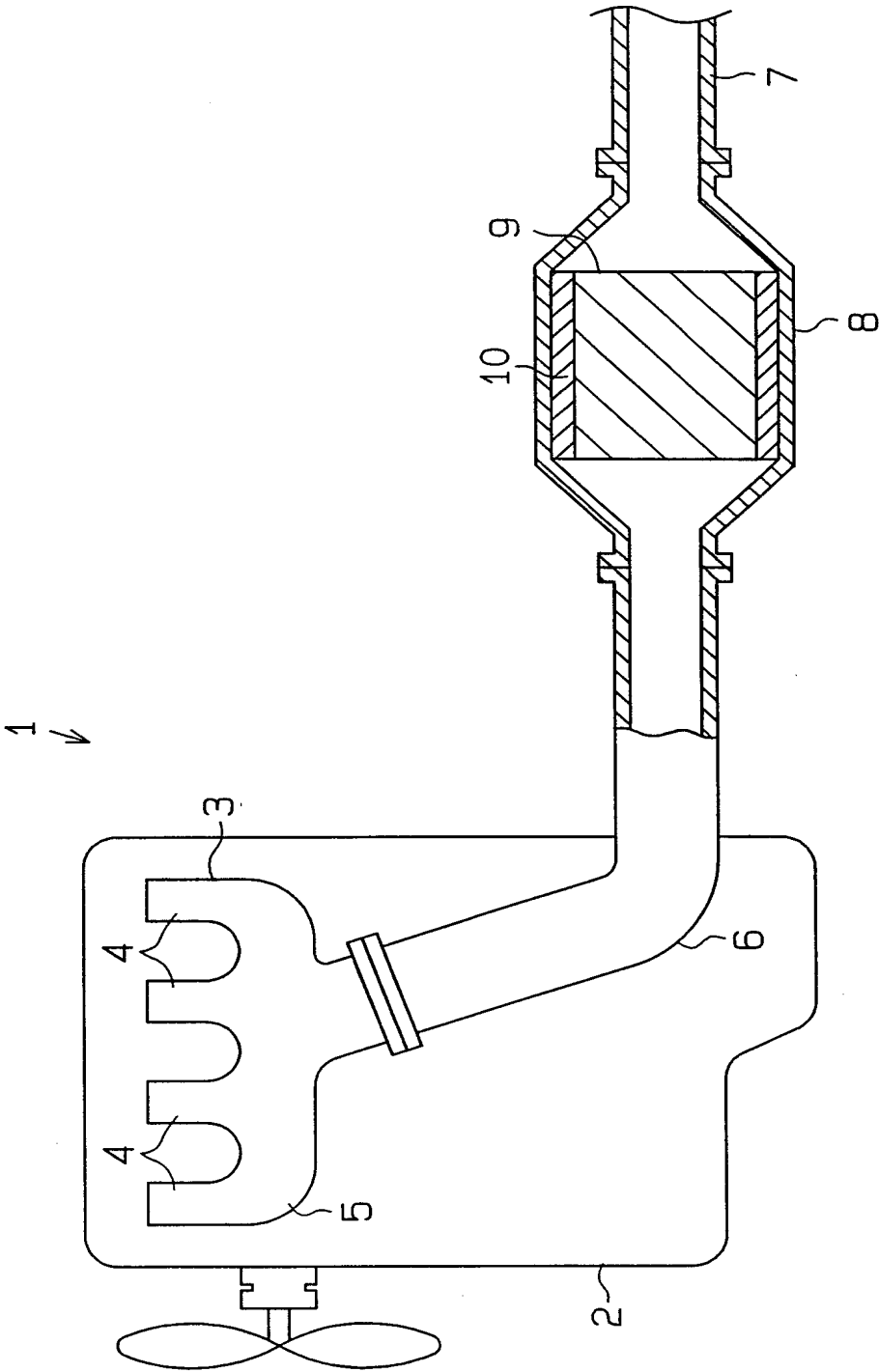
前記ハニカムフィルタの平均気孔径が $5 \sim 15 \mu\text{m}$ で、平均気孔率が $30 \sim 40\%$ であり、ハニカムフィルタは 20% 以上の貫通気孔を有することを特徴とする排気ガス浄化装置。

25. 請求項24に記載の排気ガス浄化装置において、前記ハニカムフィルタの平均気孔径が $8 \sim 12 \mu\text{m}$ で、平均気孔率が $35 \sim 49\%$ であり、ハニカムフィルタは $20 \sim 50\%$ 以上の貫通気孔を有する。

26. 請求項24又は25に記載の排気ガス浄化装置において、第1の端面が封止体(14)により封止された第1のセルと、第1のセルにセル壁を介して隣接し、第1の端面とは反対側の第2の端面が封止体により封止された第2のセルとを含む複数のセルを備え、セル数が単位平方インチあたり120個以上であるととともに、前記セルを区画するセル壁の厚みが 0.46 mm 以下である。

27. 請求項24～26のうちいずれか1項に記載の排気ガス浄化装置において、前記ハニカムフィルタの総体積は前記内燃機関における総排気量の $1/4 \sim 2$ 倍である。

Fig.1



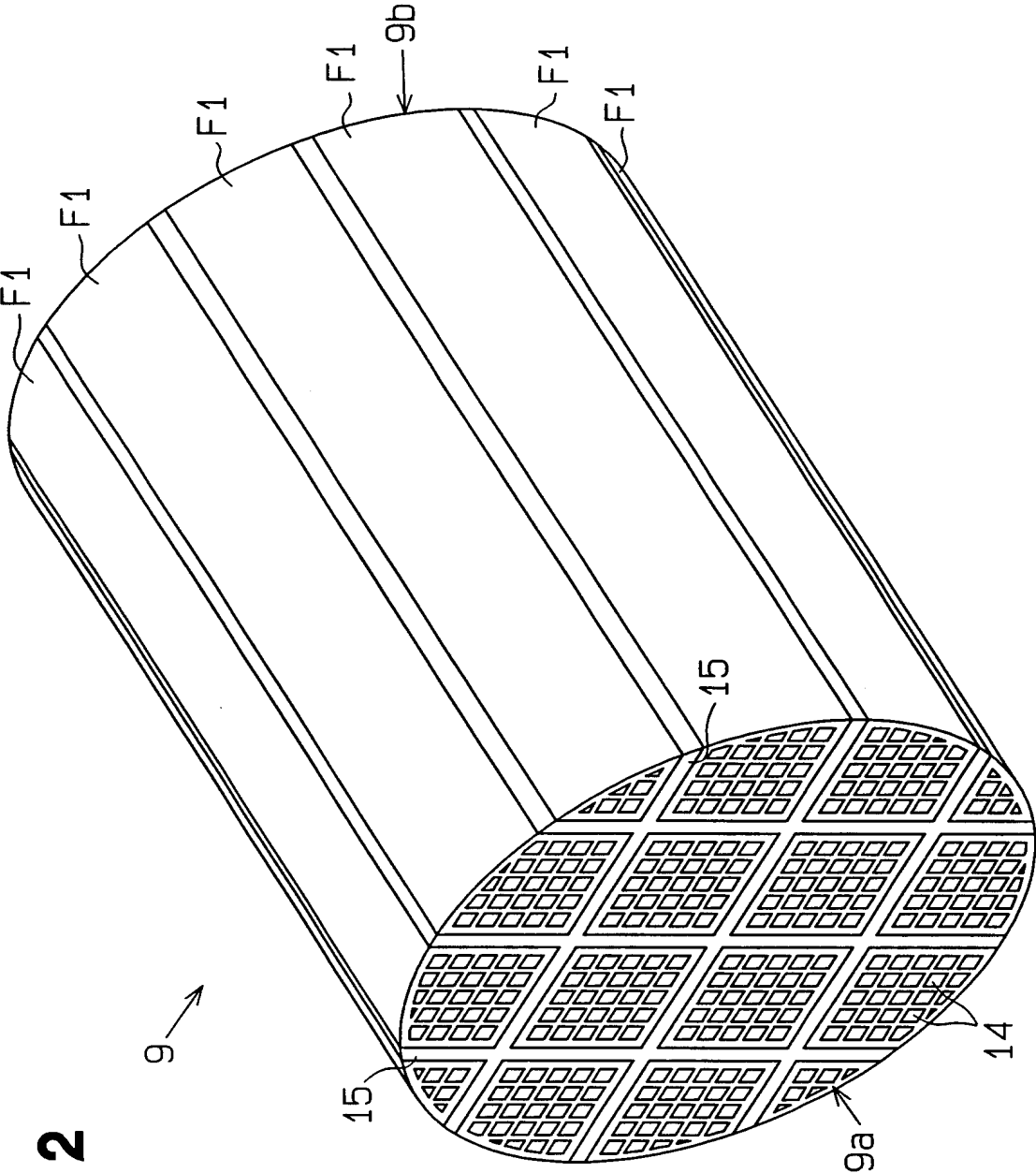


Fig. 2

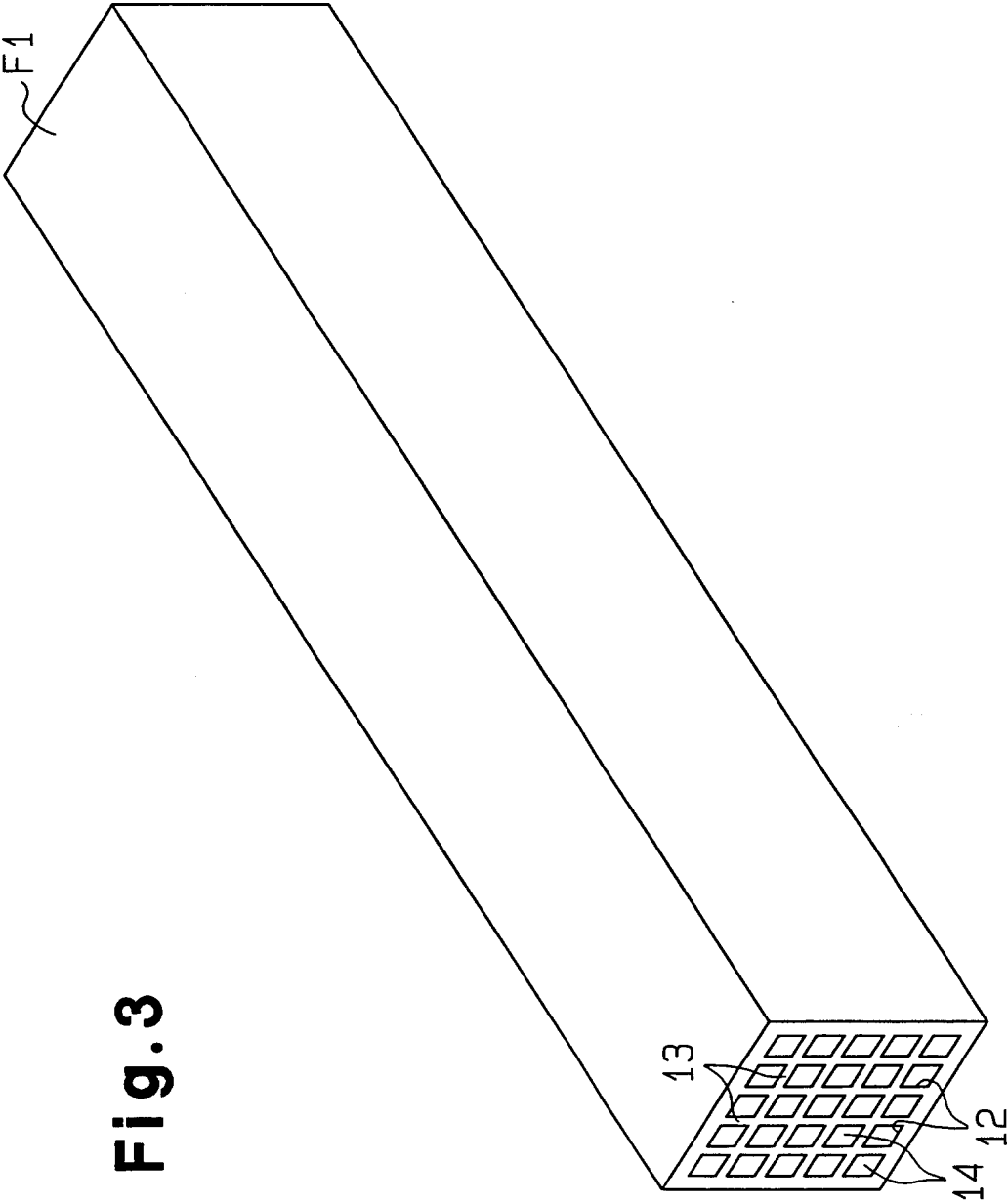
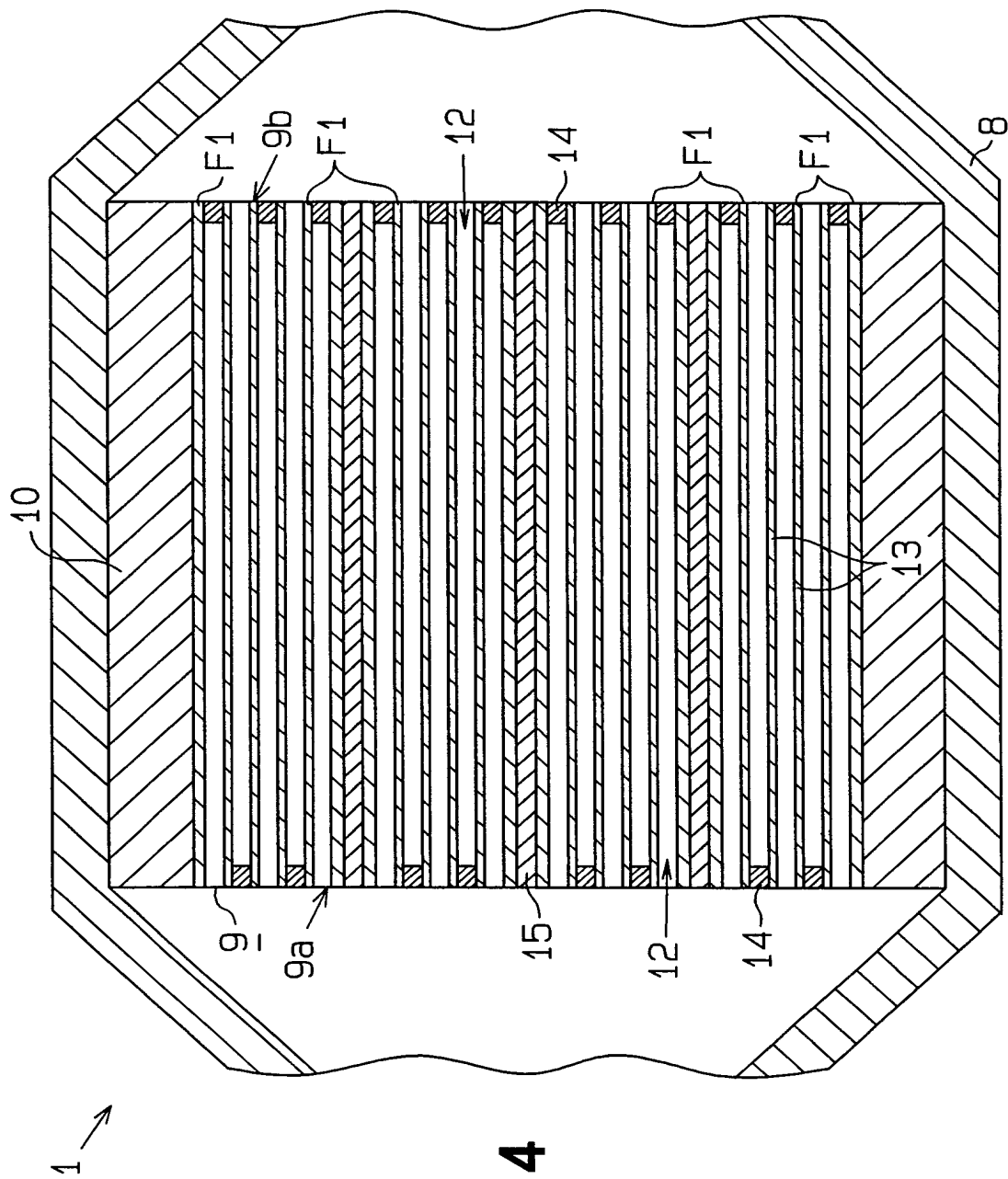
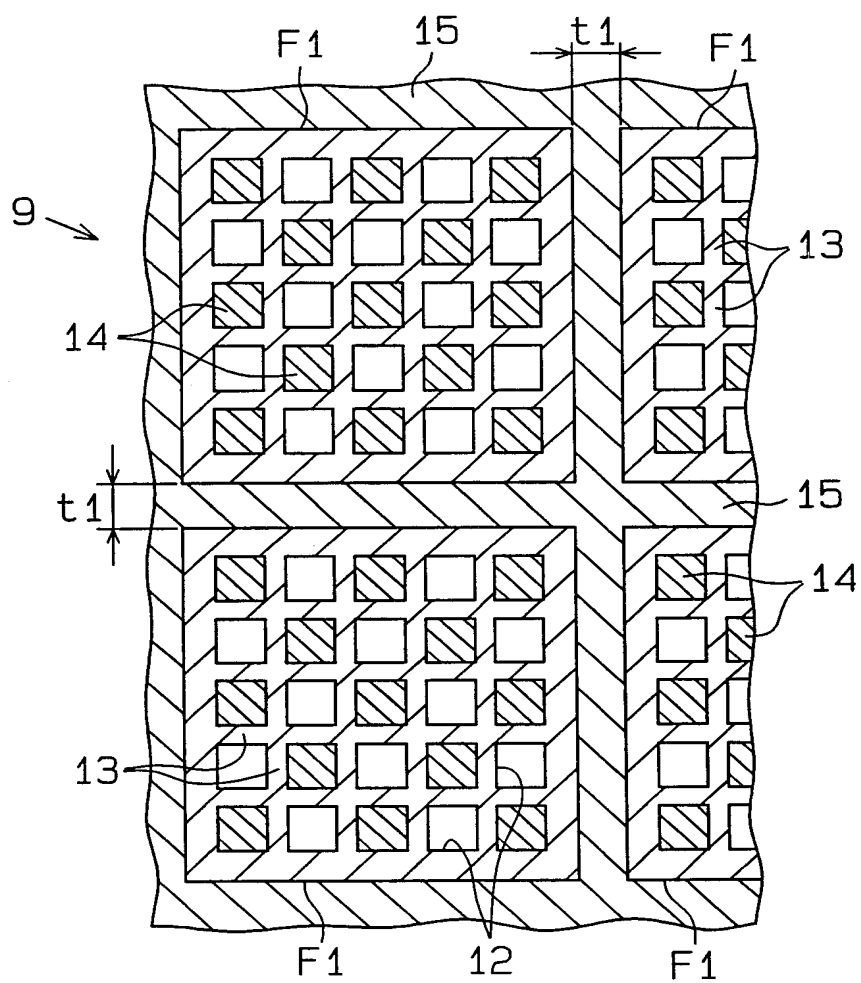


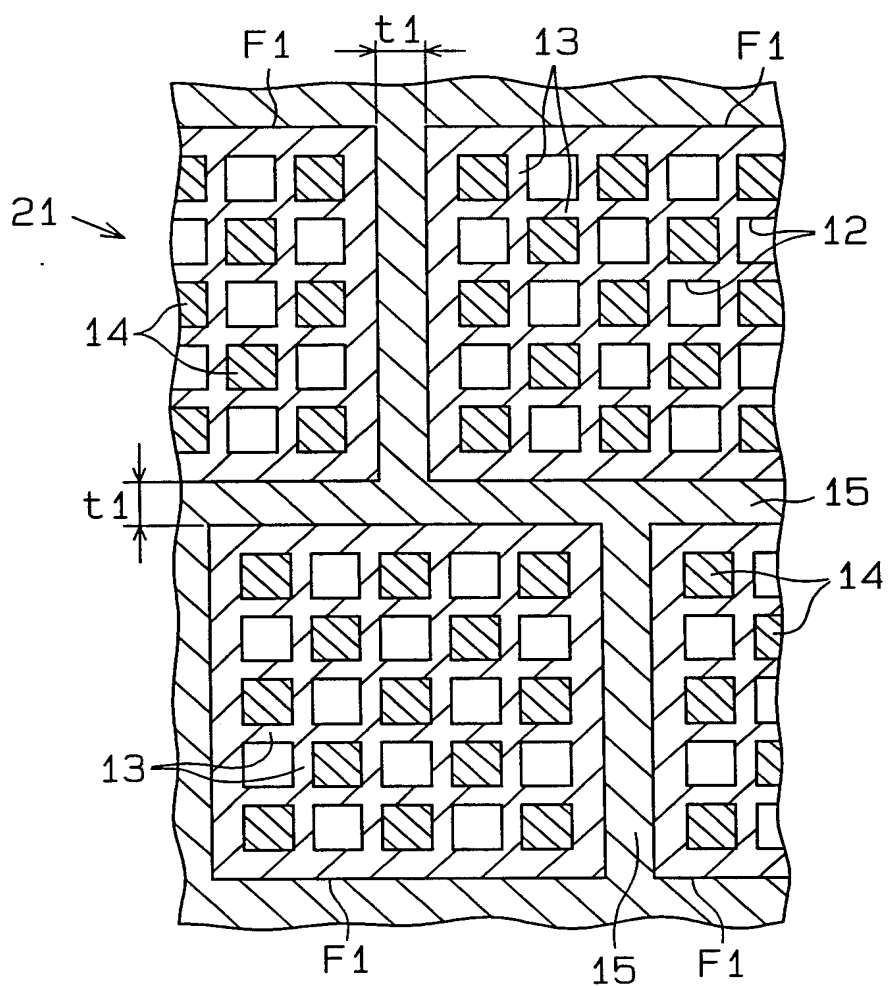
Fig. 3



5/19

Fig.5

6/19

Fig. 6

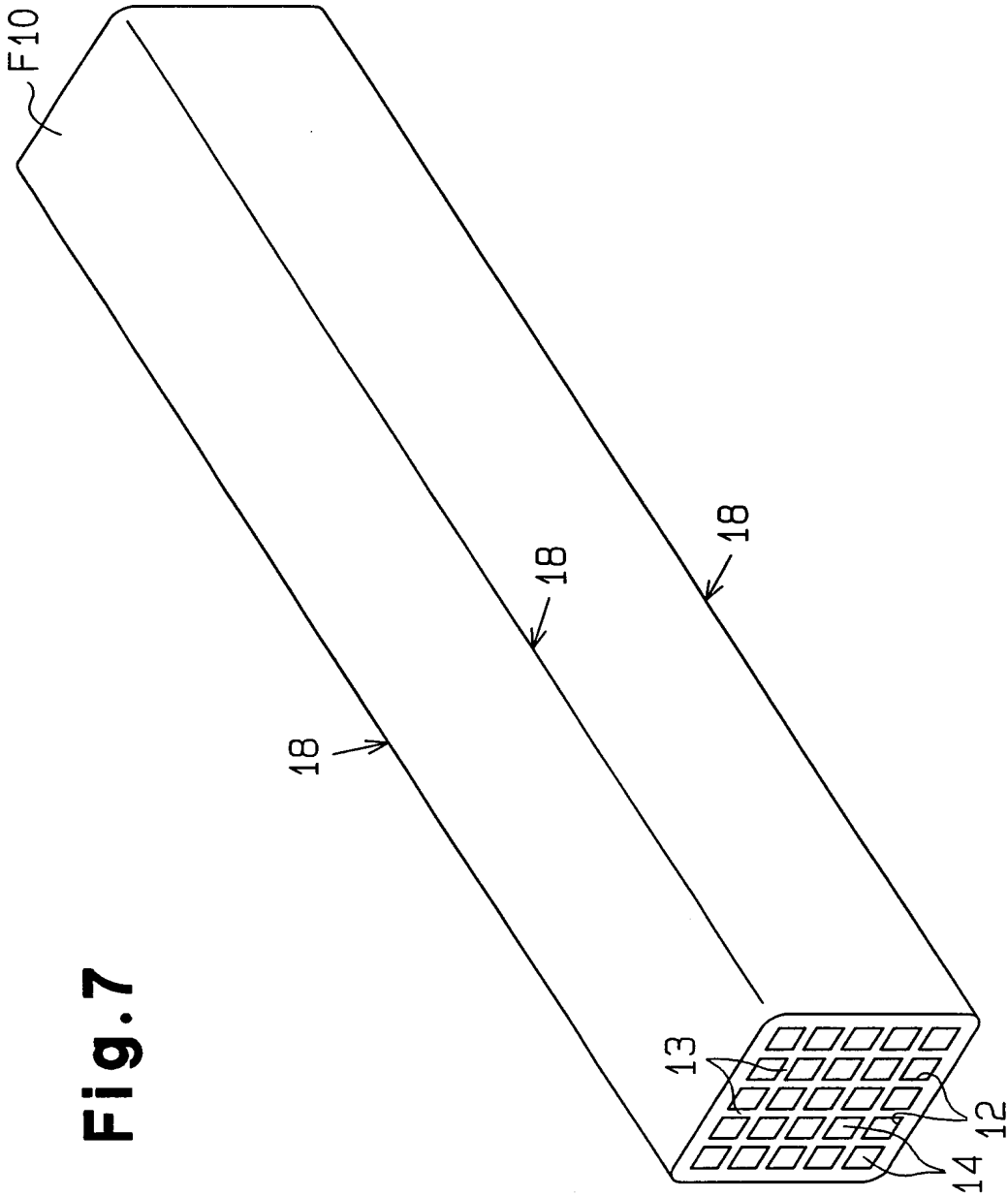
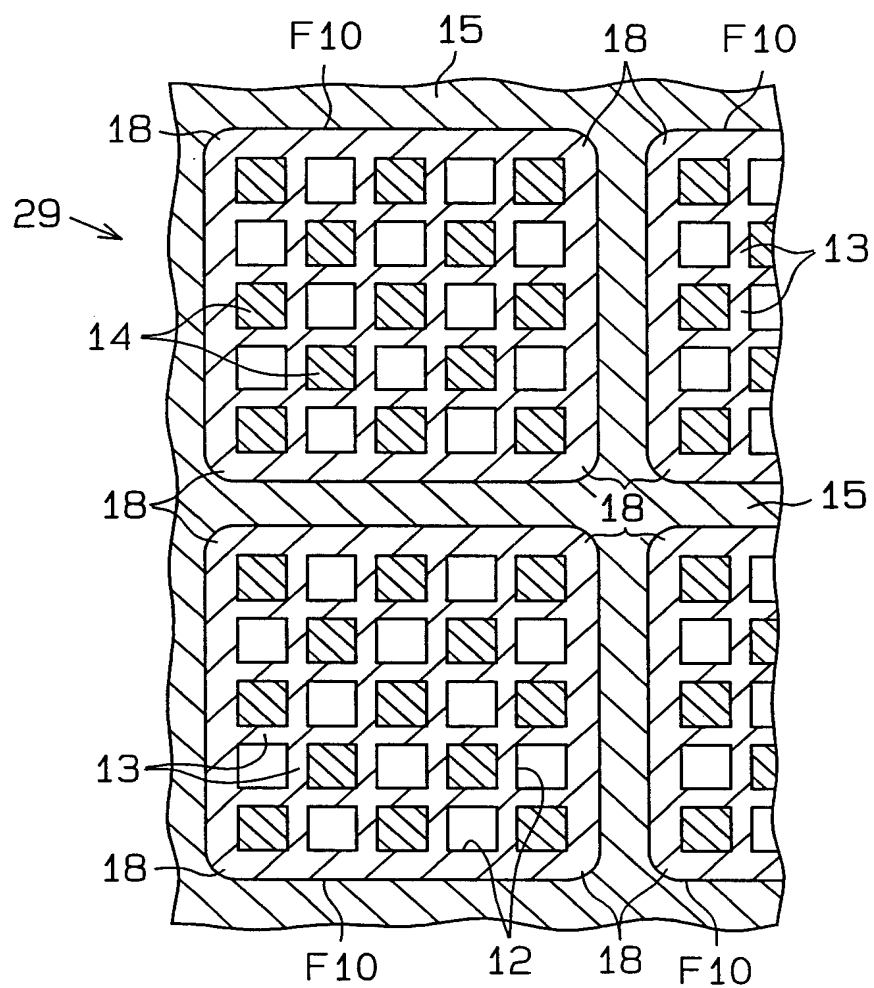


Fig. 7

8/19

Fig. 8

9/19

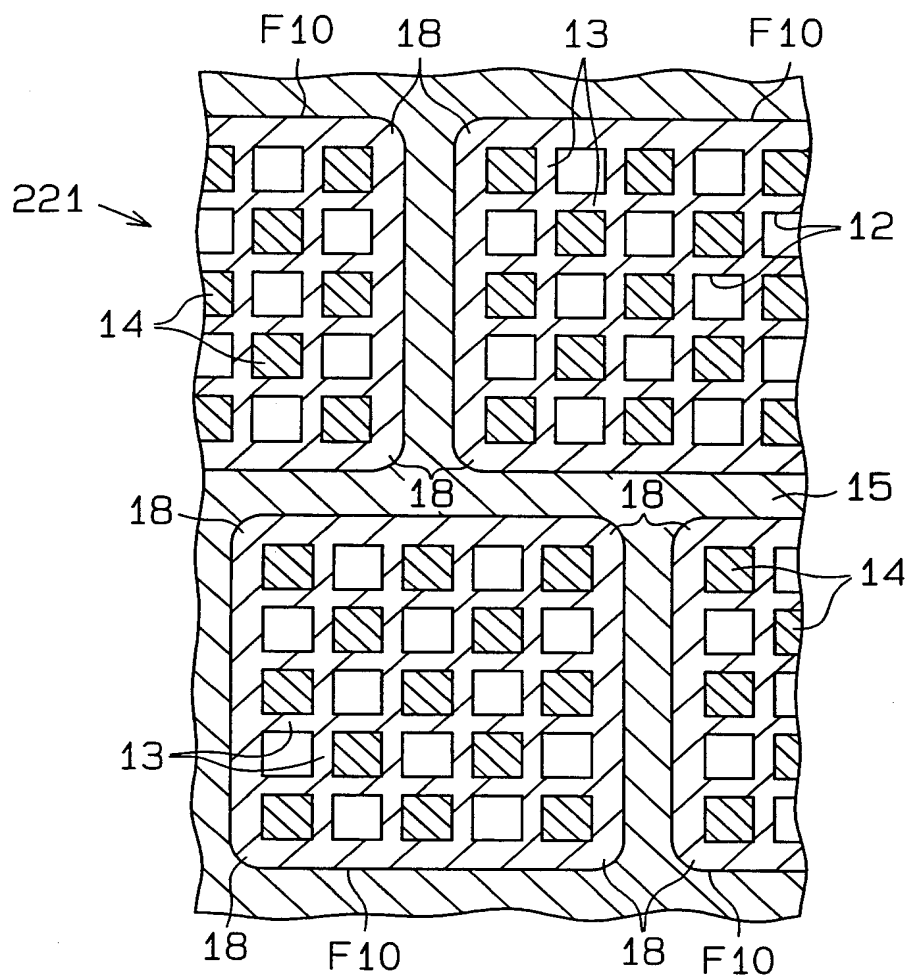
Fig. 9

Fig.10

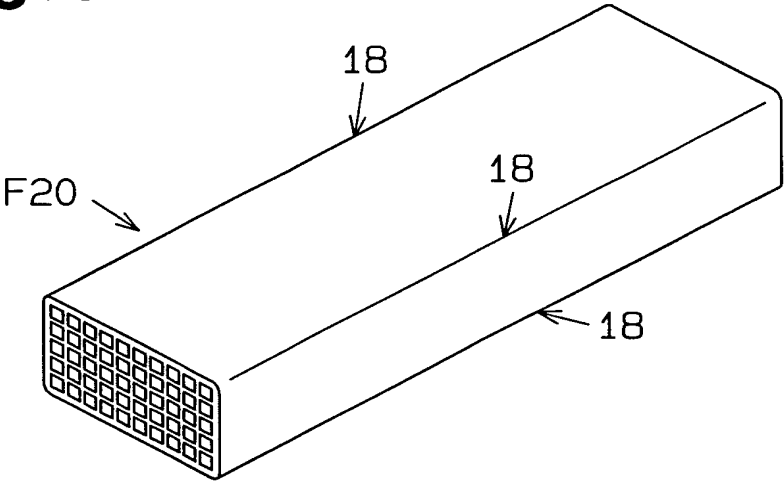


Fig.11

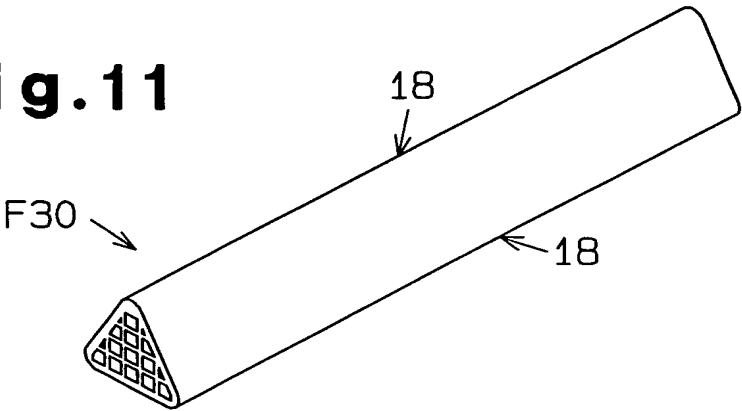
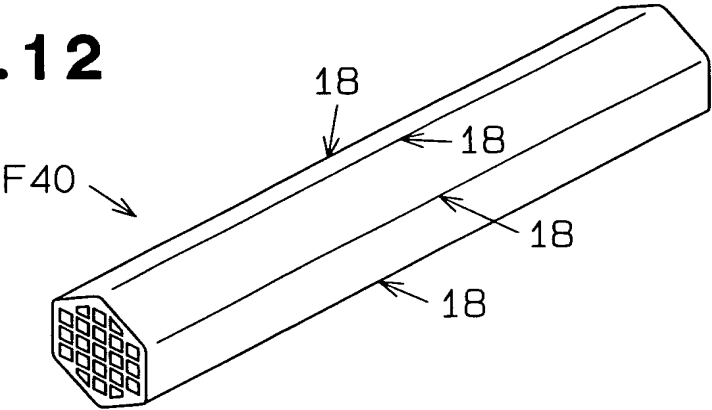
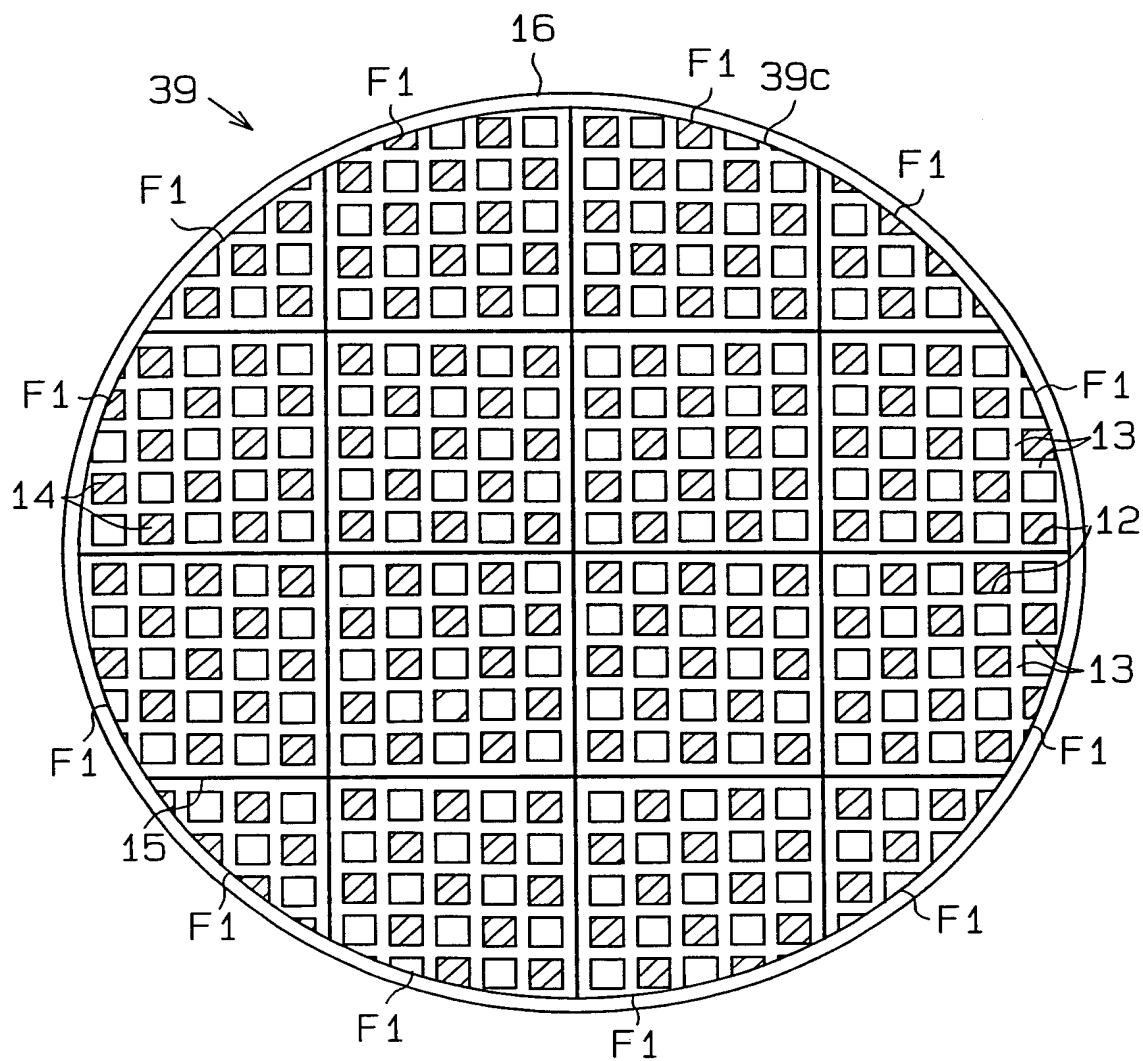


Fig.12



11/19

Fig.13

12/19

Fig.14(a)

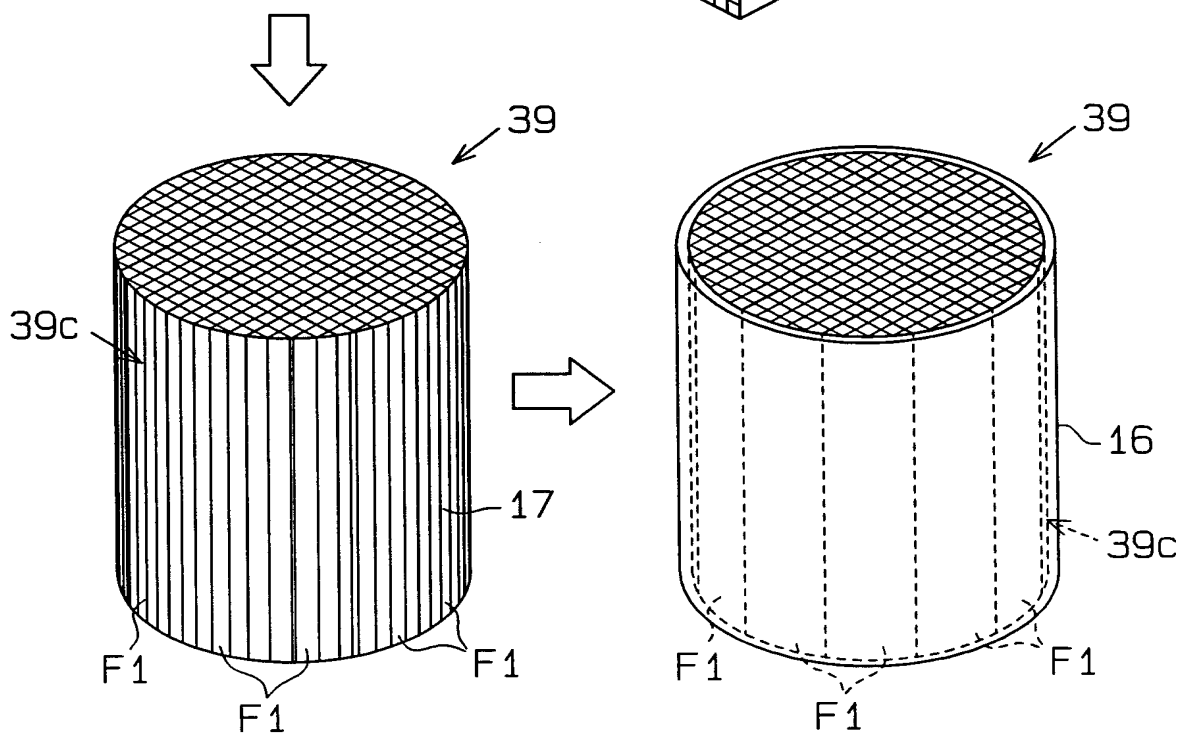
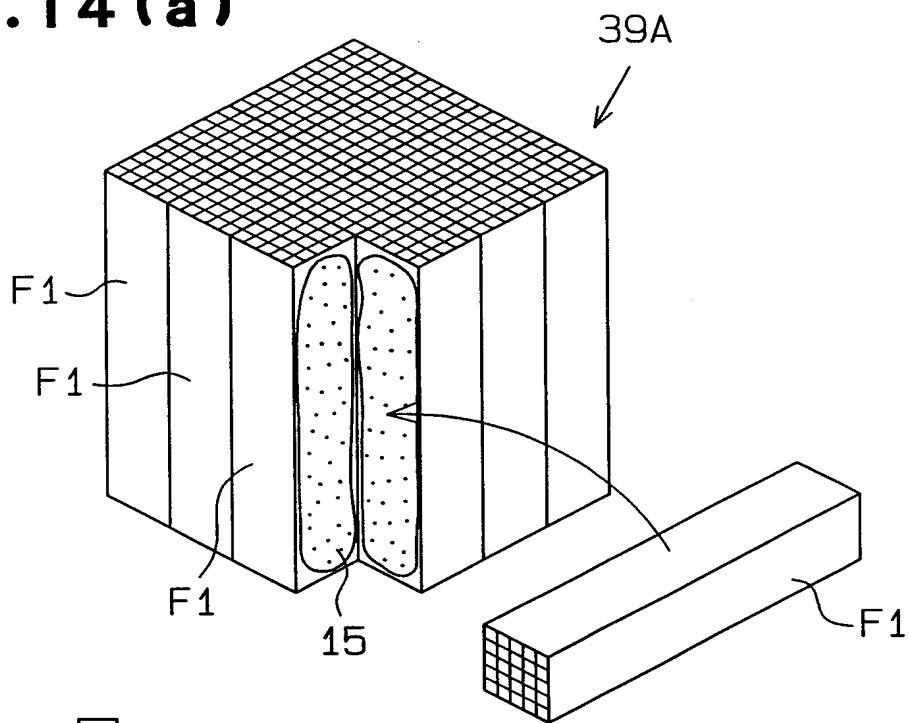
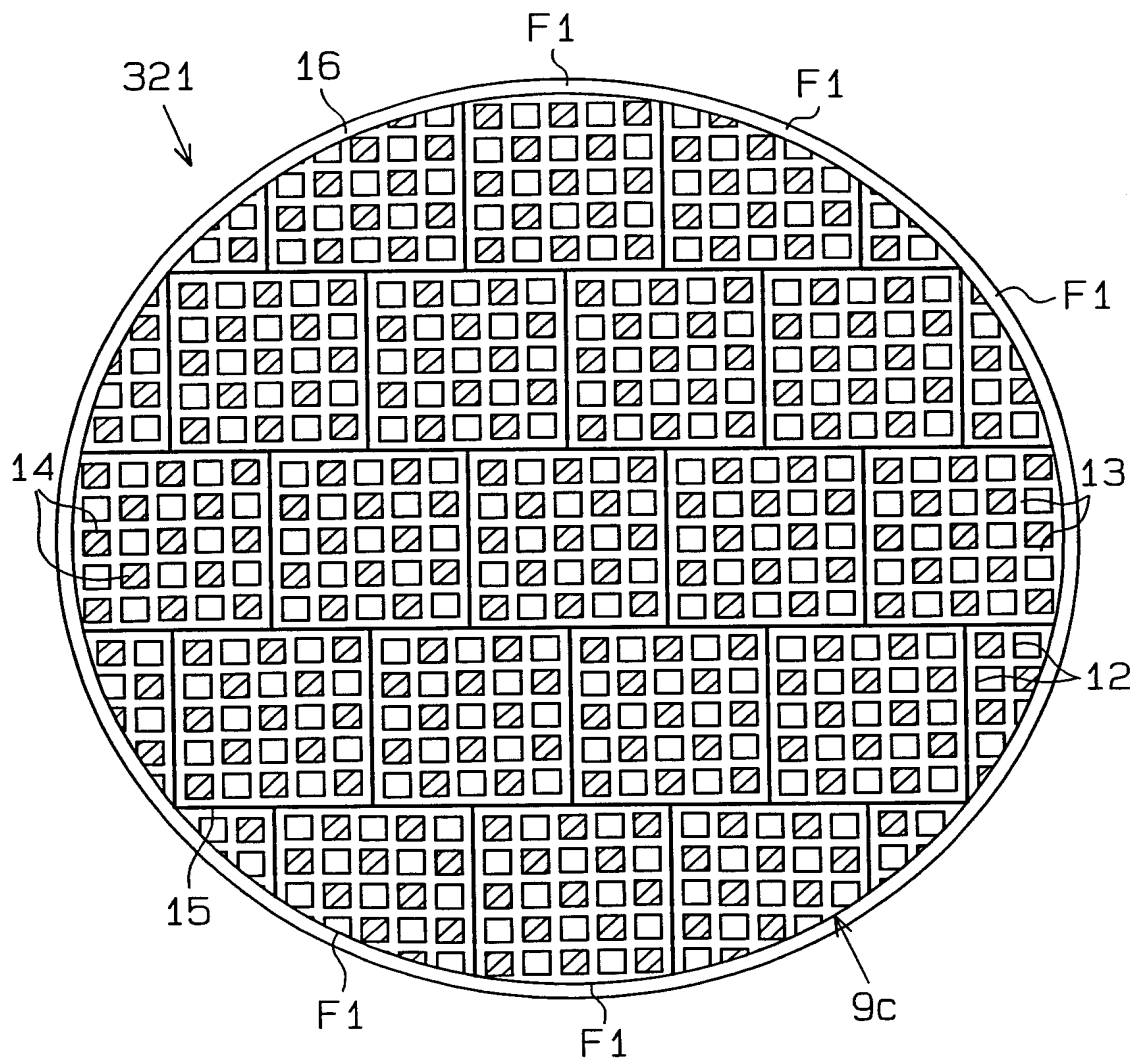


Fig.14(b)

Fig.14(c)

13/19

Fig.15

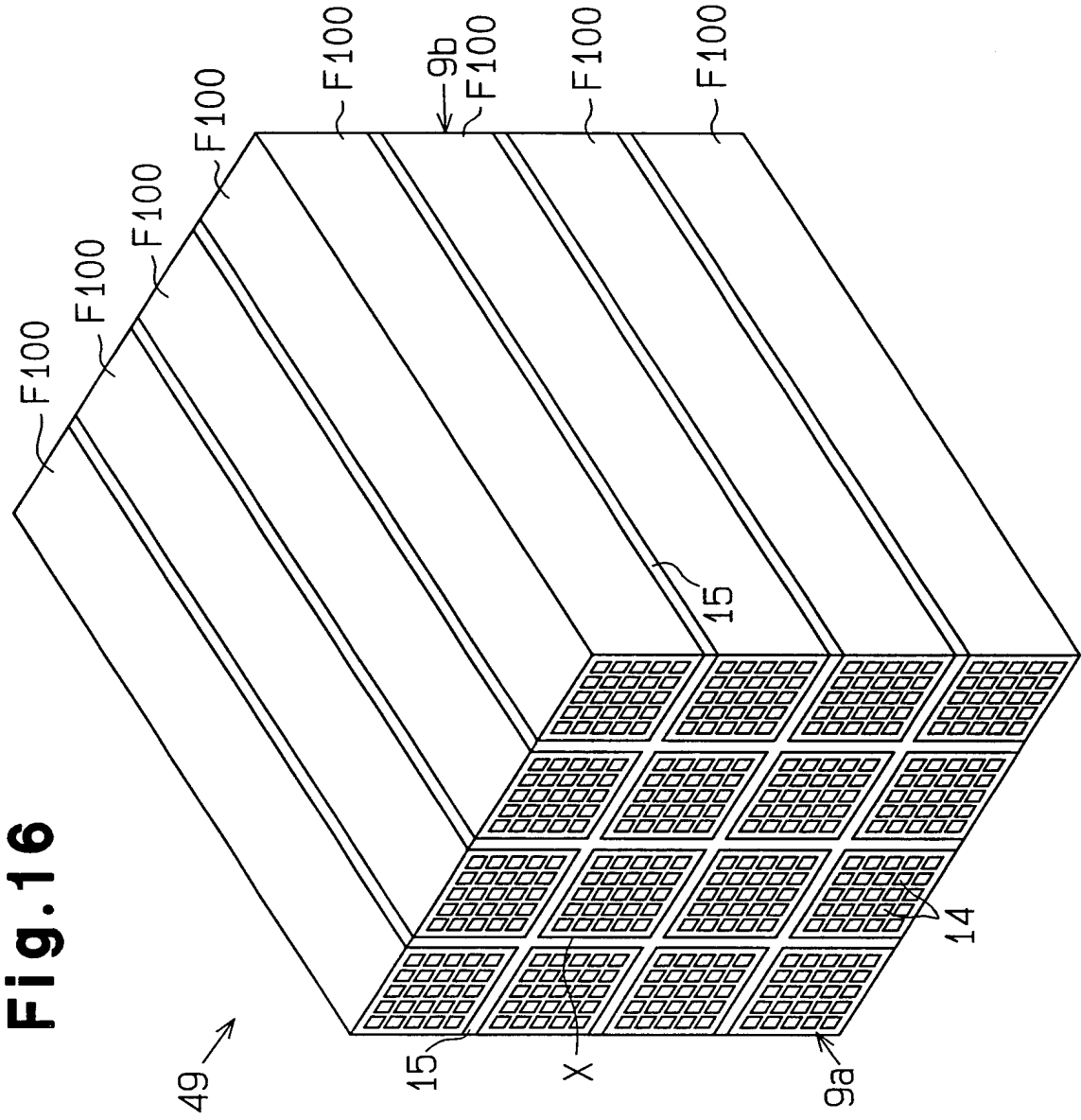


Fig. 16

Fig.17

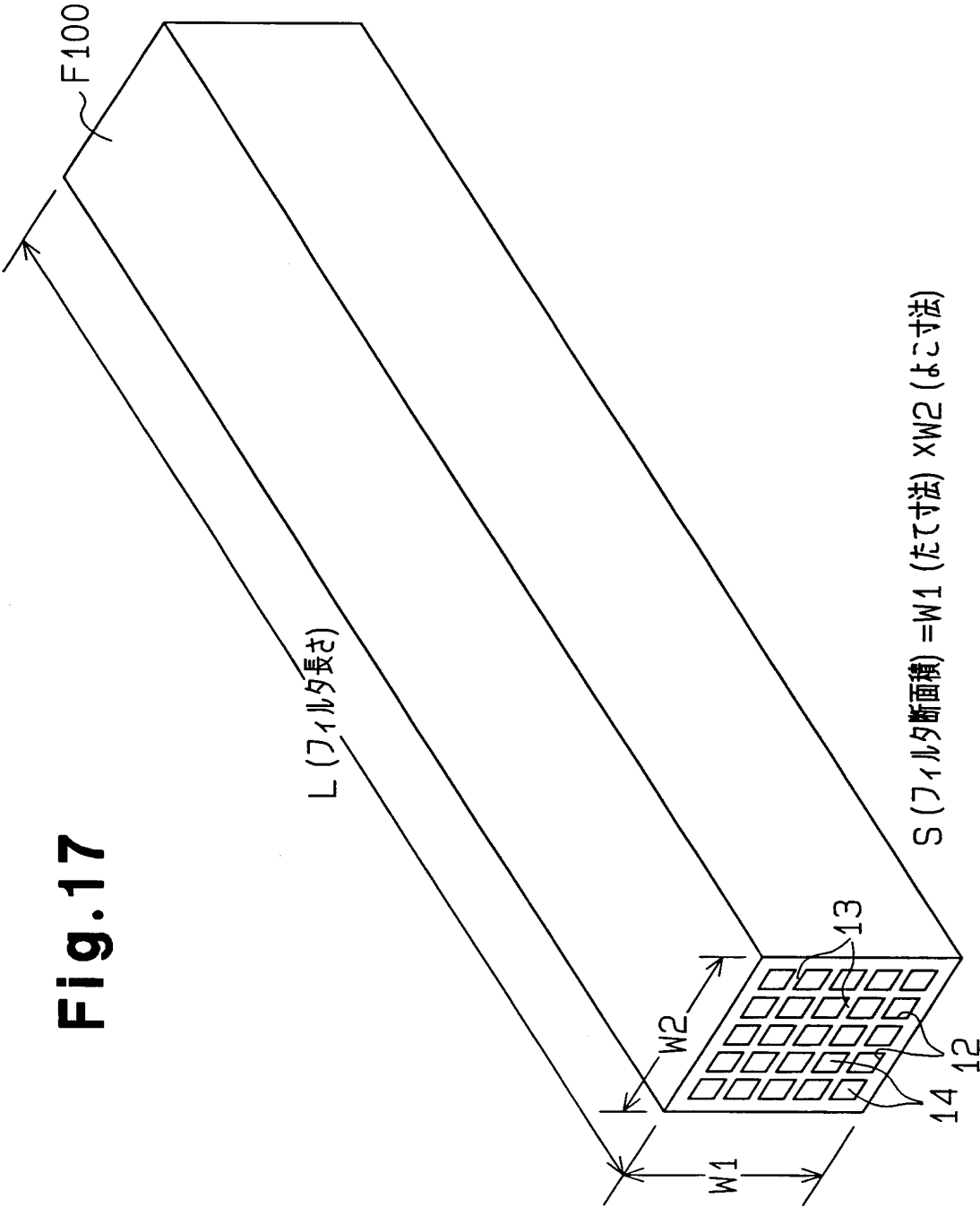
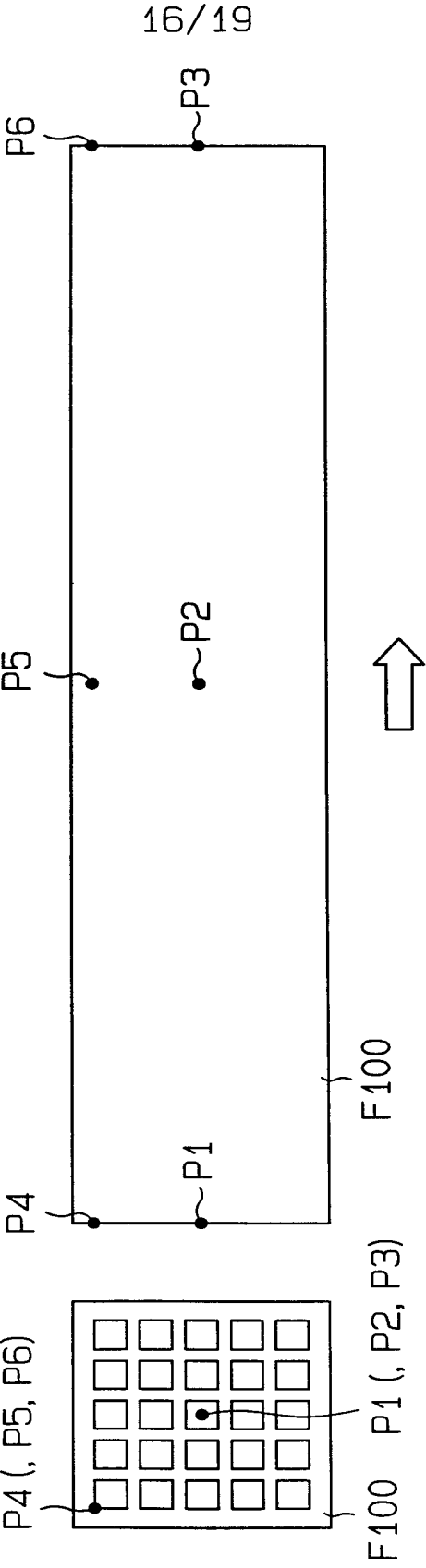


Fig.18(a) Fig.18(b)



17/19

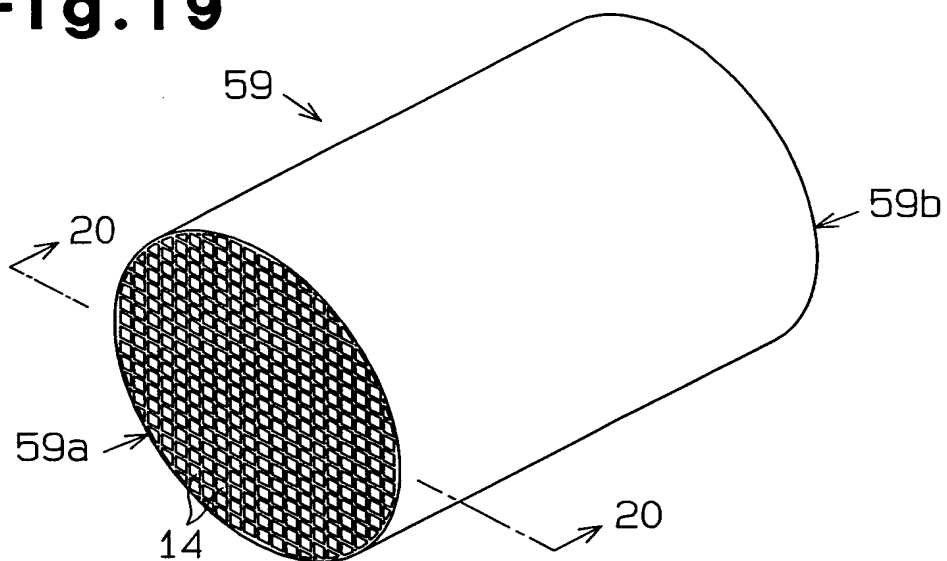
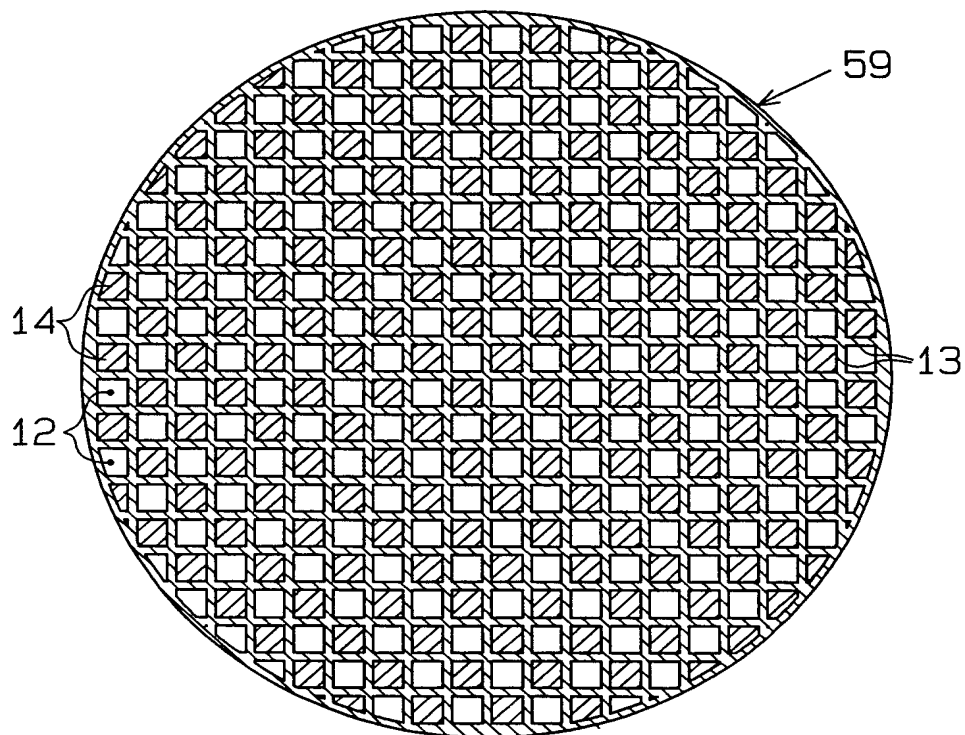
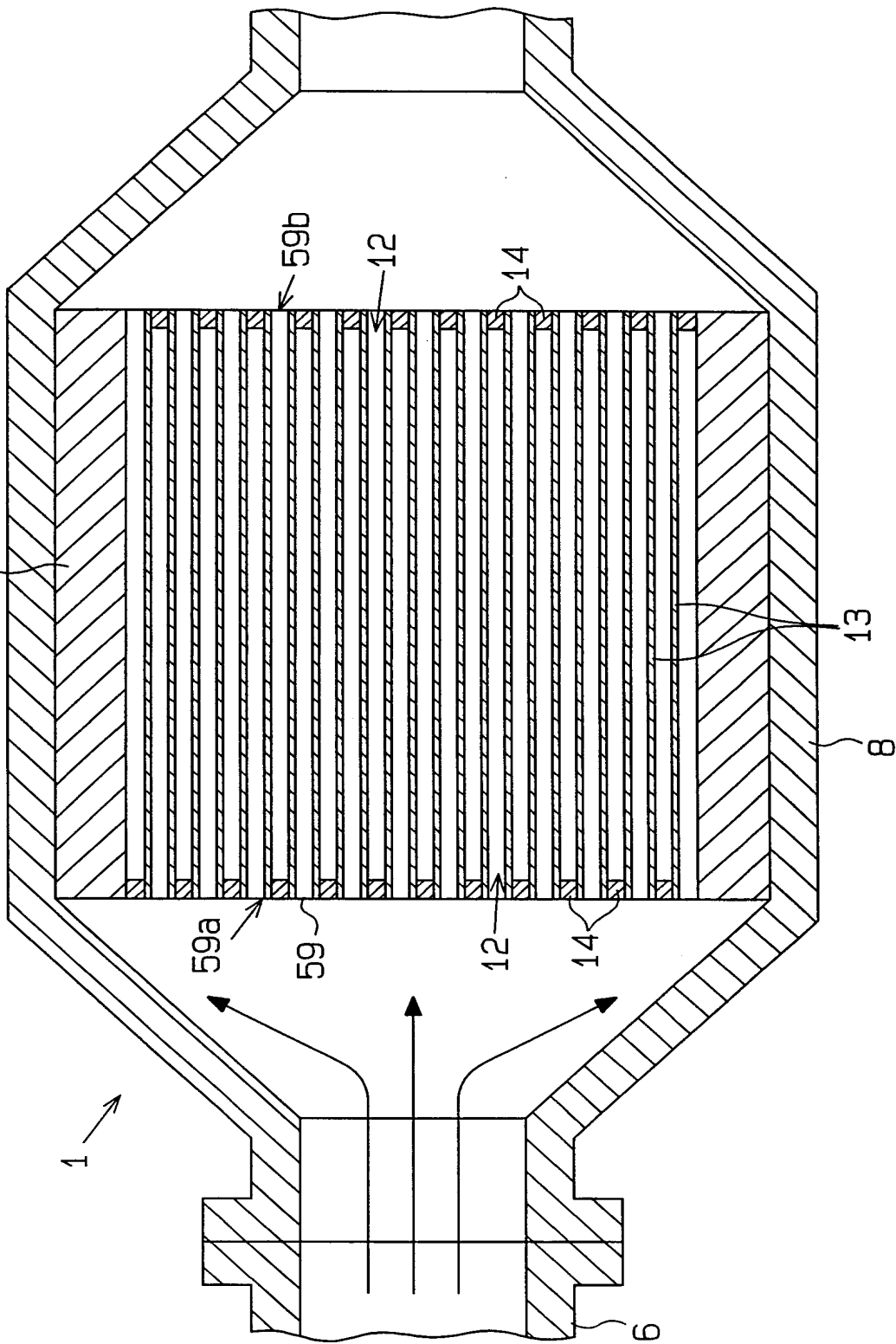
Fig.19**Fig.20**

Fig. 21



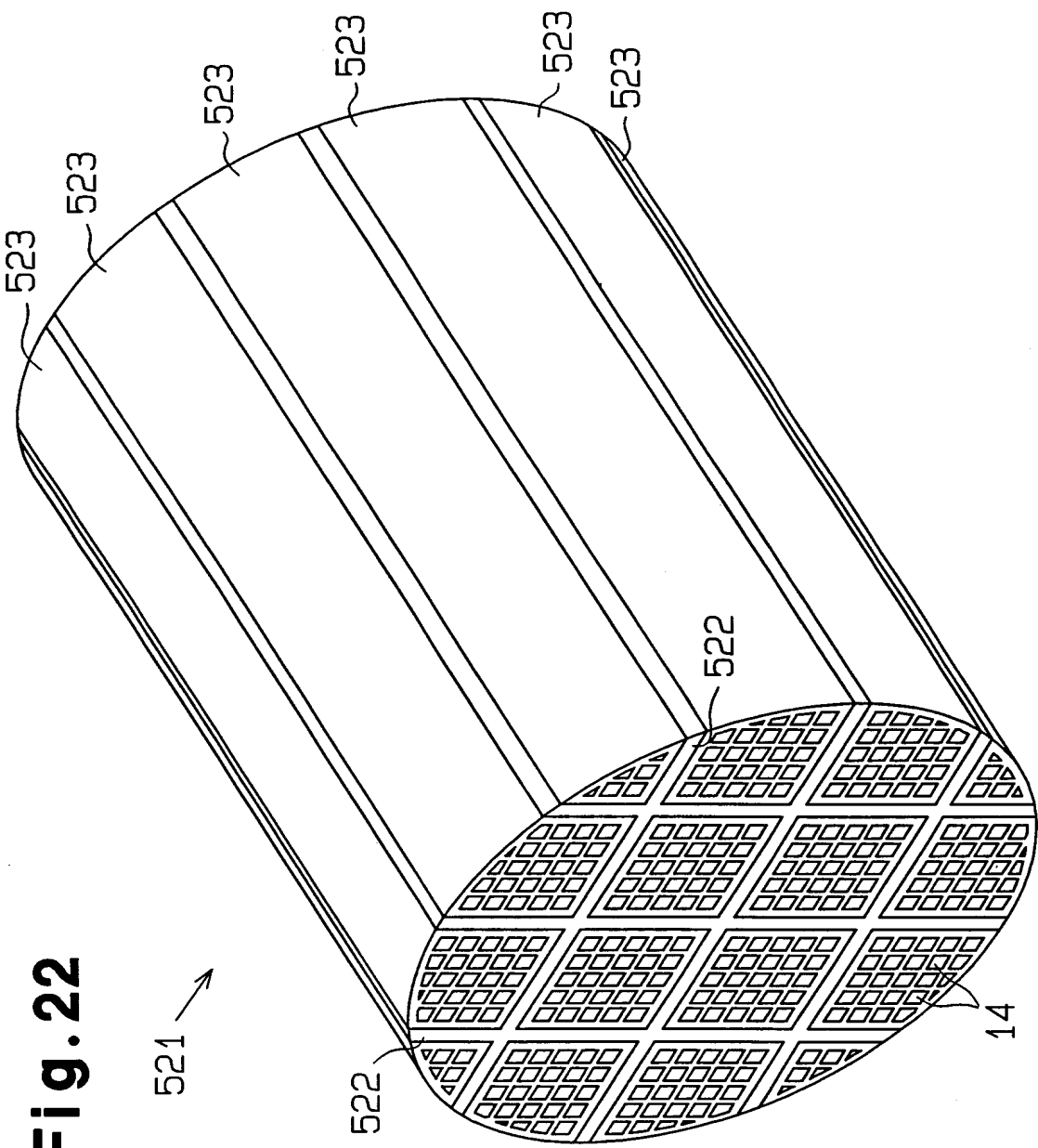


Fig. 22

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/06599

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl⁷ B01D39/20

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl⁷ B01D39/20

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho 1926-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2000
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2000 Jitsuyo Shinan Keisai Koho 1996-2000

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

WPI (DIALOG)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US, 5914187, A (Ibiden Co., Ltd.), 22 June, 1999 (22.06.99),	1-4, 10-14, 17
A	See the entire document & JP, 8-28246, A Full text & WO, 97025203, A1 & EP, 816065, A1	5-9, 15, 16, 18-27
A	JP, 11-114339, A (NGK INSULATORS, LTD.), 27 April, 1999 (27.04.99), Claims; Fig. 1 (Family: none)	1-27
A	US, 5853444, A (Thomas Josef Heimbach GmbH & Co.), 29 December, 1998 (29.12.98), Claims & JP, 10-15323, A Claims & EP, 796830, A1	1-27
EA	JP, 2000-210517, A (NGK INSULATORS, LTD.), 02 August, 2000 (02.08.00), Claims; Fig. 3 (Family: none)	1-27

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
"E" earlier document but published on or after the international filing date
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
06 November, 2000 (06.11.00)

Date of mailing of the international search report
14 November, 2000 (14.11.00)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))		
Int. Cl ⁷ B01D39/20		
B. 調査を行った分野		
調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))		
Int. Cl ⁷ B01D39/20		
最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの		
日本国実用新案公報 1926-1996年 日本国公開実用新案公報 1971-2000年 日本国登録実用新案公報 1994-2000年 日本国実用新案掲載公報 1996-2000年		
国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)		
WPI (DIALOG)		
C. 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	US, 5914187, A(Ibiden Co., Ltd.,) 22. 6月. 1999 (22. 06. 99), See the entire document & JP, 8-28246, A, 全文参照 & WO, 97025203, A1 & EP, 816065, A1	1-4, 10-14, 17
A		5-9, 15, 16, 18-27
A	JP, 11-114339, A (日本碍子株式会社) 27. 4月. 1999 (27. 04. 99), 特許請求の範囲, 【図1】 (ファミリーなし)	1-27
<input checked="" type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。		
* 引用文献のカテゴリー 「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す) 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願日の後に公表された文献 「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの 「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの 「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの 「&」 同一パテントファミリー文献		
国際調査を完了した日	06. 11. 00	
国際調査報告の発送日	14.11.00	
国際調査機関の名称及びあて先	特許庁審査官 (権限のある職員)	4Q 8618
日本国特許庁 (ISA/JP)	新居田 知生 印	
郵便番号100-8915	電話番号 03-3581-1101	内線 6422
東京都千代田区霞が関三丁目4番3号		

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	US, 5853444, A (Thomas Josef Heim bach GmbH & Co.,) 29. 12月. 1998 (29. 12. 98), Claims & JP, 10-15323, A, 特許請求の範囲 & EP, 796830, A1	1-27
EA	JP, 2000-210517, A (日本碍子株式会社) 2. 8 月. 2000 (02. 08. 00), 特許請求の範囲, 図3 (ファ ミリーなし)	1-27